

電気光学結晶を用いた楕円偏光  
テラヘルツ電場ベクトル波形の測定とその解釈

2017 年度

小口 研一

博士論文  
2017年度（平成29年度）

電気光学結晶を用いた楕円偏光  
テラヘルツ電場ベクトル波形の測定とその解釈

慶應義塾大学大学院・理工学研究科  
基礎理工学専攻 物理学専修

小口 研一

---

## 論文要旨

テラヘルツ周波数帯では、テラヘルツ時間領域分光法 (Terahertz time-domain spectroscopy ; 以下、THz-TDS) を用いた光電場の時間波形計測が盛んに行われている。同分光法を用いると、試料を透過したテラヘルツ光電場の時間波形をフーリエ変換し、試料がないときの参照信号と比較することで、クラマース・クロニツヒ変換を用いることなく試料の複素屈折率を測定することができる。そのため様々な物性計測への応用が期待され、行われてきた。また近年では、THz-TDS の手法を拡張し、偏光情報も含めた電場ベクトル波形計測を行うことによって、試料の複素屈折率の異方性を調べる取り組みも行われている。

THz-TDS における代表的な光電場波形検出法として、電気光学 (electro-optic ; 以下、EO) サンプリング法が知られている。この手法は、EO 結晶内での非線形光学効果を通じて、検出が難しいテラヘルツ周波数帯の情報を、検出が容易な近赤外光周波数帯の情報へと転写することで、テラヘルツ光電場を計測する手法である。最近では、同手法を用いることで、テラヘルツ光電場の大きさだけでなく、その向き (偏光情報) も含めた電場ベクトル波形を計測できることが示され、様々な分光応用が進められている。

しかし、EO サンプリング法では、周波数の異なるテラヘルツ光と近赤外プローブ光が EO 結晶内部を異なる速度で進む為、EO 結晶内部でプローブ光と相互作用するテラヘルツ電場ベクトルの大きさと向きが時々刻々と変化してしまうという、いわゆる「位相不整合」の問題がある。この位相不整合が起こるために、一般に、計測された波形は空气中を伝搬してきたテラヘルツ電場ベクトル波形を正確に再現しない。この問題は EO サンプリング法の開発当初から認識されており、先行研究では位相不整合による影響を除去することで、測定した時間波形から正確なテラヘルツ光電場波形を復元した。一方で、より位相不整合の影響が複雑に関与するベクトル時間波形については、正確な光電場ベクトル波形を復元する手法は確立していなかった。

そこで本論文では、EO サンプリング法で計測されるベクトル時間波形を解釈することで、電場ベクトル時間波形を正確に復元する方法の確立を目指して、理論構築・実験検証を行った。その結果、測定したベクトル時間波形を周波数解析すれば、テラヘルツ光の各周波数成分の正確な偏光状態が復元できることが分かった (第3章)。また、EO 結晶の屈折率などの情報を考慮することで、正確なテラヘルツ光電場ベクトル時間波形の復元に成功した (第4章)。さらに、以上の手法について、結晶対称性の異なる様々な EO 結晶を用いても、同様に偏光計測できることを示した (第5章)。本論文で提案する方法論は、電磁波の伝搬を記述する普遍的な Maxwell 方程式を基本としたものであるから、テラヘルツ周波数領域の光電場ベクトル時間波形の検出だけではなく、中赤外光や近赤外光などの様々な周波数帯での光電場ベクトル時間波形計測へと応用することが可能な重要な成果である。

# 目次

<b>第 1 章</b>	<b>はじめに</b>	<b>5</b>
1.1	電磁波の電場波形測定	5
1.2	テラヘルツ電場波形の計測方法	6
1.3	テラヘルツ電場ベクトル波形計測	7
1.4	テラヘルツ電場ベクトル波形計測の応用例	9
1.5	電気光学結晶の対称性を利用した電場ベクトル波形計測の問題点	10
1.6	本論文の目的と構成	14
1.7	略語一覧と変数一覧	16
<b>第 2 章</b>	<b>テラヘルツ時間領域分光法の先行研究</b>	<b>19</b>
2.1	本章の構成 (先行研究の紹介)	19
2.2	テラヘルツ時間領域分光法の測定系	20
2.3	非線形光学結晶を利用したテラヘルツ波の発生方法	20
2.4	電気光学結晶を用いた電場ベクトル測定方法	21
2.4.1	ジョーンズベクトルとジョーンズ行列	22
2.4.2	電気光学信号の導出	24
2.4.3	回転電気光学結晶法	25
2.4.4	偏光状態を表すパラメーター	26
2.5	先行研究に於ける波形歪み効果の取り扱い方	29
2.5.1	複屈折描像に基づく解釈	29
2.5.2	周波数混合描像に基づく解釈	31
2.6	周波数混合描像による測定結果解釈の必要性	33
2.7	位相不整合下で測定された楕円偏光の解釈の必要性	34
2.8	本章のまとめ	35
<b>第 3 章</b>	<b>電気光学結晶の対称性を用いたテラヘルツ偏光分光測定 of 定式化</b>	<b>36</b>
3.1	本章の構成 (偏光分光の検証の必要性)	36
3.2	基礎方程式の導入	36
3.3	楕円偏光電場波形の定義	38
3.4	バランス検出信号の導出	41
3.5	位相不整合の効果を検討した電気光学結晶法による偏光測定	44
3.6	本章の理論構築の結論	45
3.7	実験検証	46
3.7.1	測定系の説明	46
3.7.2	回転電気光学結晶法による電場ベクトルの測定方法	47
3.7.3	実験結果	49
3.7.4	ポアンカレ球を用いた実験結果の考察	51
3.8	本章のまとめ	52

<b>第 4 章</b>	<b>電気光学結晶の対称性を用いたテラヘルツ電場ベクトル波形の復元</b>	<b>54</b>
4.1	本章の構成 (時間領域での解釈の必要性)	54
4.2	時間領域での電気光学信号導出の目的	54
4.3	時間領域での電気光学信号の導出	54
4.3.1	周波数領域から時間領域への変換	54
4.3.2	時間領域での電気光学信号の導出	55
4.3.3	先行研究との比較について	58
4.4	本章の理論構築の結論	59
4.5	波形復元の実験検証	60
4.6	本章のまとめ	65
<b>第 5 章</b>	<b>対称性の異なる電気光学結晶を使用した偏光計測</b>	<b>66</b>
5.1	本章の構成 (対称性の異なる結晶について)	66
5.2	電気光学信号の導出	66
5.3	結晶構造の対称性とバランス検出信号の関係	68
5.4	本章の理論構築の結論	70
5.5	実験検証	70
5.6	本章のまとめ	72
<b>第 6 章</b>	<b>まとめと展望</b>	<b>74</b>
6.1	まとめ	74
6.2	今後の展望	75
6.2.1	今後の展望-より広帯域な電場ベクトル計測に向けて	75
6.2.2	今後の展望-円偏光二色性計測に向けて	75
6.2.3	今後の展望-非同期サンプリング法に向けて	76
6.2.4	今後の展望-テラヘルツ電場振幅の測定に向けて	77
6.2.5	今後の展望-スクイズド光測定に向けて	77
<b>付 録</b>		<b>80</b>
付録 A	基礎方程式の適用範囲について	80
付録 B	電気光学結晶の残留複屈折が回転電気光学結晶法測定に与える影響	82
付録 C	波形復元の近似： $\Delta/k_1^R$ の大きさについて	84
付録 D	波形復元に使用したパラメーター	86
付録 E	バランス検出信号の $\varphi$ 依存性について	88
付録 F	テラヘルツ電場ベクトル波形の形状について	89
付録 G	復元波形と薄い EO 結晶を用いて測定された電場ベクトル波形の比較	91
<b>参考文献</b>		<b>98</b>
<b>謝辞</b>		<b>99</b>
<b>研究業績リスト</b>		<b>101</b>

# 第1章 はじめに

## 1.1 電磁波の電場波形測定

現代社会に於いて、光を用いた測定は欠かせないものとなっている。分光測定では物質ごとの吸収スペクトルの違いを利用して試料に含まれる分子の構造同定が行われている。干渉測定では光路長の差に応じて干渉が強め合う、または弱め合うことを利用して薄膜の膜厚から建築物の大きさまで多種多様な距離の測定 (測距) が行われている。偏光測定では物質の光弾性 (応力を加えると複屈折が生じる性質) を利用して試料の応力・ひずみ計測が行われている。しかし、これらの測定手法で直接測定しているのは光強度であり、強度スペクトル・位相・偏光情報などを得る為には分光器や偏光子などの専用の素子が必要になる。それ故、偏光計測装置は偏光測定に特化された装置になり、他の光のパラメーターも併せて測定できる装置に拡張することが難しい。既に成熟した研究・工業分野では、光の特定のパラメーターの測定だけで十分な知見が得られる場合もあるが、もし光が持つ情報 (電場振幅・周波数・位相・偏光など) を同時に測定することができるようになれば新しい研究・工業分野の開拓に繋がる可能性がある。

光の振幅・周波数・位相・偏光といった情報は、光が時間によって振動しながら空間を伝搬する様子、つまり光の電場波形に含まれている。その為、光の電場波形を測定することができれば電場波形に含まれる光の情報を利用した様々な測定が可能になることが期待される。しかしマイクロ波よりも周波数の高い電磁波は一般に電気信号として取り出すことができない為、電場波形を測定することはできなかった。

そうした中で1980年代、マイクロ波よりも少し周波数の高いテラヘルツ周波数領域にてテラヘルツ電場波形を測定することに成功した [1]。光の電場波形には光の周波数・位相・強度などの様々なパラメーターが含まれているので、測定された電場波形をフーリエ変換するだけでスペクトル情報が得られ、分光測定が可能になる。他にもパルス電場の電場波形測定は超音波エコーのようなトモグラフィーに応用されるようになった [2]。テラヘルツ波は紙・布・プラスチックなどの多くの絶縁体や半導体を透過することができるので、様々な試料の内部を検査することができる [3]。また近年では電場波形測定を用いた様々な時間分解測定が発明された。ここでは、特に注目を浴びているテラヘルツ電場波形測定を応用した時間分解測定について紹介したい。

### I. スクイズド光

ハイゼンベルクの不確定性原理より物体の位置と運動量を同時に決めることはできない。電場の場合、光子数 (電場振幅) と位相を同時に決めることはできず、電場の振幅と位相はある程度の揺らぎを持つ。図 1.1(a) のように振幅と位相の揺らぎの大きさが等しい状態をコヒーレント状態という。一方で2つの揺らぎの大きさが異なる状態をスクイズド状態とい、図 1.1 (b) または (c) のような揺らぎを持つ。振幅の揺らぎが抑制された振幅スクイズド光 (図 1.1(b)) を使用すればより高精度な光強度測定が、また位相の揺らぎが抑制された位相スクイズド光 (図 1.1(c)) を使用して干渉測定を行えばより高精度な干渉測定が可能になる。このように光をコヒーレント状態からスクイズド状態に変換すると、ハイゼンベルクの不確定性原理を破ることなく、量子雑音を抑えた更に高精度な測定が可能になる。テラヘルツ周波数領域ではスクイズド状態のテラヘルツ電場波形を測定することができるという特性を活かし、今まで時間平均しか分からなかった光の量子状態を時間分解して調べることができるようになった [4,5]。時間波形の観察を

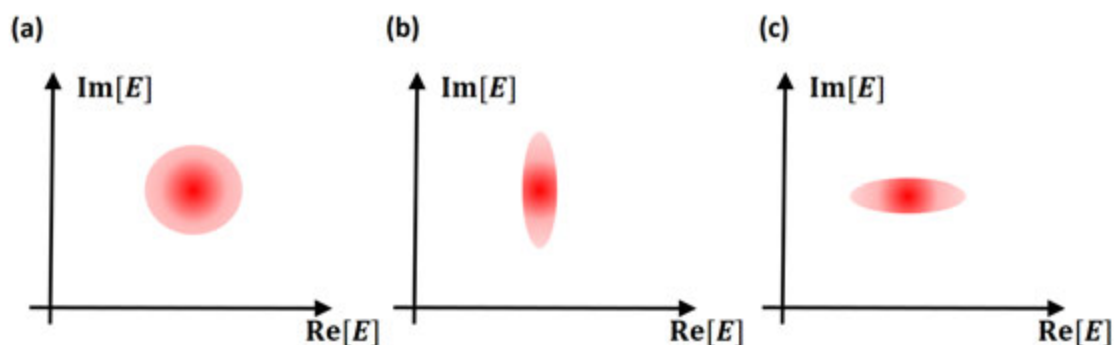


図 1.1: (a) 縦と横方向の揺らぎの大きさが等しいコヒーレント状態での電場揺らぎの様子 (b,c) 縦と横方向の揺らぎの大きさが異なるスクイズド状態での電場揺らぎの様子。

通して今後は振幅と位相の揺らぎを別々に測定できると期待されている。

## II. スピン制御

現在の磁気デバイスは電流や電流が作る磁場を使用して制御されており、電流に伴うジュール熱の発生によって消費電力低下が制限されている。また電流のスイッチング速度が書き込み・読み込み速度を制限している一因になっている。そこで電流の代わりに光パルスやその磁場成分による磁気デバイス制御が期待されている [6]。テラヘルツ周波数領域では電場波形測定を用いて、磁性体のスピンの向きがテラヘルツ光パルスによって向きを変える様子を時間分解して測定することができる [7]。時間分解測定により、スピンのピコ秒以下の応答速度でテラヘルツ磁場の振動に追従しながら回ることが確認されている [7]。

このようにテラヘルツ周波数帯で電場波形測定ができるようになった為、上述したような新規の分光・トモグラフィー・物性計測などの手法が開発された。

さて電場波形測定手法 [1] はテラヘルツ周波数帯で最初に実現したが、近年のレーザー技術の発展に伴い測定可能な周波数上限は年々更新されている [8,9]。そして 2016 年、電場波形測定が可能な周波数上限は 230 THz まで (波長に換算すると  $1.3 \mu\text{m}$  まで) に達した [10]。周波数のより高い可視・紫外光領域については、ガス中の非線形光学効果を利用した類似の電場波形測定手法が開発されており、その成果が注目を集めている [11,12]。このように時間と共に振動する光の電場波形を正確に測定することは大きな研究分野となっている。

## 1.2 テラヘルツ電場波形の計測方法

本節ではテラヘルツ電場波形の計測方法である、テラヘルツ時間領域分光法 (Terahertz time-domain spectroscopy: THz-TDS) について説明する。テラヘルツ周波数帯の電磁波は周波数が低い為、一般のフォトディテクタで検出することできず、長年、冷却したボロメーター以外の機器で検出することができなかった。そうした中で、1984 年、Auston らはヘルツ型のダイポールアンテナに近赤外領域の超短パルスレーザー光を照射すると周波数 1 THz ほどの電磁波 (以下、テラヘルツ電場) が発生すること、またダイポールアンテナにパルスレーザー光とテラヘルツ電場を同時に照射するとテラヘルツ電場の検出ができることを発見し、ここから THz-TDS の研究が始まった [1] (以降ではマイクロ波帯のアンテナと区別する為にテラヘルツ波用のアンテナを光伝導アンテナと記述する)。更に、1988 年 Auston らは電気光学 (electro-optic: EO) 結晶と呼ばれる非線形光学結晶を用いて、同様の方法でテラヘルツ電場の発生・検出に成功した。このように THz-TDS は一般のフォトディテクタで検出することが難しいテラヘルツ電場の情報を、超短パルスレーザー光のプロブ光を用いて、検出が容易

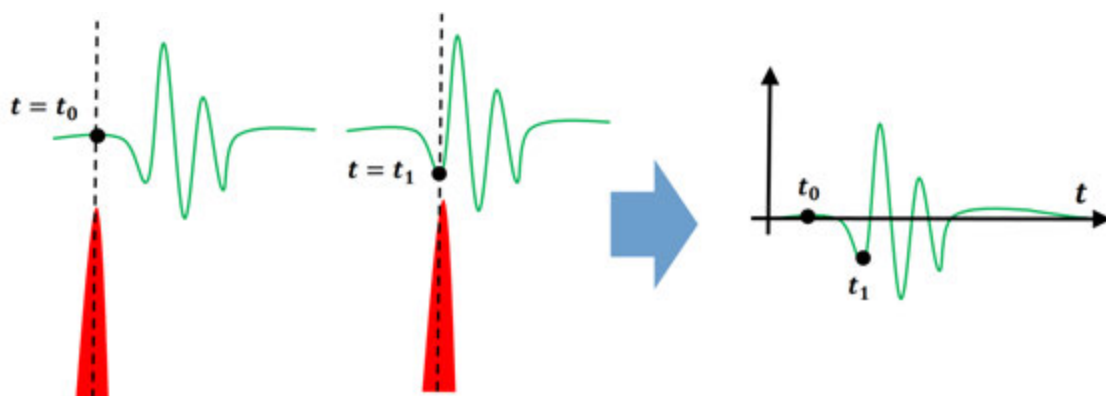


図 1.2: 超短パルスレーザー (赤く塗りつぶされたパルス) と時空間的に重なるテラヘルツ電場波形 (緑色の波) の様子。超短パルスレーザーとテラヘルツ電場波形のどちらかの光路長を変えると超短パルスレーザーと時空間的に重なるテラヘルツ電場波形の 1 点の時刻を変えることができる。

な近赤外光や電流に転写し測定する手法である。なぜ近赤外光や電流に転写できるかというと、光伝導アンテナに近赤外のプローブ光を照射するとキャリアが生成され、ここにテラヘルツ電場が入射するとテラヘルツ電場によりキャリアが動き、テラヘルツ電場の大きさに比例する電流が流れるからである。EO 結晶の場合、EO 結晶にテラヘルツ電場が入射すると 1 次の電気光学効果であるポッケルス効果によって、元々屈折率が等方的だった EO 結晶がテラヘルツ電場が存在する時だけ、屈折率が異方性 (複屈折) を示す結晶に変化するからである。この時、超短パルスレーザーをプローブ光として入射させると EO 結晶の複屈折によってプローブ光の偏光状態が変化する。複屈折の大きさ (遅軸と速軸の屈折率の差) はテラヘルツ電場の振幅に比例する為、超短パルスレーザーのプローブ光の偏光状態の変化の度合いからテラヘルツ電場振幅を測定できる。

ここで重要な点は約 1 ps の周期で振動するテラヘルツ波に対してプローブ光はパルス幅 100 fs 以下の超短パルスレーザー光である為、光伝導アンテナや EO 結晶の内部でプローブ光と時間的に重なる非常に短い時間スケールの電場振幅の情報のみを測定できる事である。その為、図 1.2 に示すように、テラヘルツ波の 1 サイクルよりも短い時間スケールで電場の大きさを調べることができる。

次にテラヘルツ電場波形を測定する方法について述べる。まずプローブ光の光路中に光路長を調整できる遅延ステージを設置し、テラヘルツ電場とプローブ光の相対遅延時間を変えられるようにする。この時の状況を図 1.2 に示す。まず最初の状態では、プローブ光と時間的に重なる時刻  $t_0$  でのテラヘルツ電場の大きさ  $E_{\text{THz}}(t_0)$  が測定から得られる。次に遅延ステージを走査してプローブ光の光路長を変化させる。すると、プローブ光と時間的に重なる  $E_{\text{THz}}(t_1)$  が得られる。このようにテラヘルツ電場とプローブ光の相対遅延時間を変えながらテラヘルツ電場の大きさを測定すること、テラヘルツ電場波形を測定する手法が THz-TDS である。

### 1.3 テラヘルツ電場ベクトル波形計測

前節ではテラヘルツ電場波形の計測方法について説明した。ただし前節の測定方法では電場波形の 1 偏光成分のみを測定することができる。よって図 1.3(a) に示すような電場ベクトルの向きが常に一定である直線偏光の電場波形を測定する場合なら問題ないが、図 1.3(b) のような時間によって電場ベクトルの向きを変える電場波形を測定するには不十分である。ここで図 1.3(a) の波形を直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形、図 1.3(b) の波形を楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形と定義する。楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形では時間によって電場ベクトルの向きと大きさの両方が変化するので、ある時刻  $t$  での向きと振幅 (または直交 2 成分である X, Y 成分) を同時に測定できる手法が必



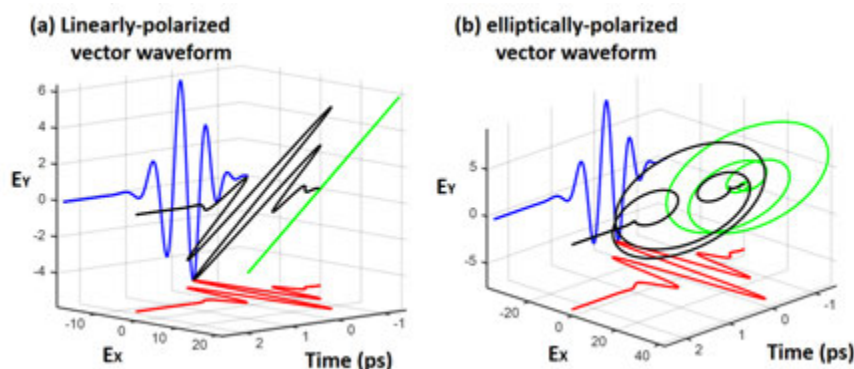


図 1.3: 電場の X, Y 成分の時間変化を示す 3 次元プロット。(a) 直線偏光の電場ベクトル波形 (b) 楕円偏光の電場ベクトル波形。一般的に非線形光学結晶などを使用して発生させた波形は (a) のような直線偏光であり、(a) の波形が複素屈折性や円偏光二色性を持つ試料を透過すると (b) のような楕円偏光の波形になる。

要になる。本節では楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形を 2 成分に分解して測定する手法 [13–20] について説明する。ここでは主に最もよく使用されている 4 つの手法について述べる。

#### I. 光伝導アンテナを用いた楕円偏光の電場ベクトル波形計測手法

1 つ目は 2 対、または 3 対の電極を持つ光伝導アンテナを使用する手法である [14, 15]。前節で説明した通り電極間に流れる電流値はテラヘルツ電場振幅に比例する。ある電極ペア間の電流値から電場ベクトルの X 成分を、別の電極ペア間の電流値から Y 成分を測定する。この手法ではアンテナの設計を最適化することにより非常に感度よくテラヘルツ電場を検出することができる。また素子が小型な為、測定系をコンパクトにまとめることができるという長所を持つ。一方、応答速度がキャリアの寿命によって制限される為、中赤外などの高周波の測定に向かない、電極間の微小ギャップに電場が集中するので高強度の電場は測定できないことが欠点である。

#### II. 空気プラズマを用いた楕円偏光の電場ベクトル波形計測手法

2 つ目は高強度のプローブ光によって発生した空気プラズマを用いた手法である [21, 22]。発生した空気プラズマに電圧をかける方向を調整することで電場ベクトル波形の X, Y 成分を測定する手法である。周波数の高いテラヘルツ電場も検出が可能という長所がある。一方で、空気をプラズマ化させる程、高強度のプローブ光が必要となり、装置が大掛かりになるという欠点がある。

#### III. ワイヤグリッド偏光子を用いた楕円偏光の電場ベクトル波形計測手法

3 つ目はワイヤグリッド (wire-grid: WG) 偏光子という金属の細線を一定の周期で並べた偏光子を用いた手法である [16, 17]。WG 偏光子の細線と平行な偏光成分は遮断し、細線と垂直な偏光成分は透過する。テラヘルツ電場ベクトル波形を計測するには、まず偏光子で X 成分を切り出し光伝導アンテナや EO 結晶を使用して電場波形の X 成分を測定し、次に Y 成分を切り出し Y 成分の波形を測定し、最後に 2 つの波形を合成する。非常に簡便に偏光測定ができるという利点がある一方で、WG 偏光子を使用できる周波数帯域が狭い、テラヘルツ周波数帯の WG 偏光子の消光比が可視光帯の偏光子と比べて悪いという欠点がある [17]。

#### IV. 電気光学結晶の対称性を用いた楕円偏光の電場ベクトル波形計測手法

最後の手法は電気光学結晶の対称性を用いた手法である。前節で説明した通り、本手法ではポッケルス効果による複屈折を利用する。詳細は第 2 章で数式を用いて説明するが、ここでは閃亜鉛結晶 (Zinc-blende) 型の結晶構造を持つ EO 結晶を用いてテラヘルツ電場ベクトルの X, Y 成分を測定する方法を説明する。まず図 1.4(a) に示すように EO 結晶の結晶軸をプローブ光の偏光

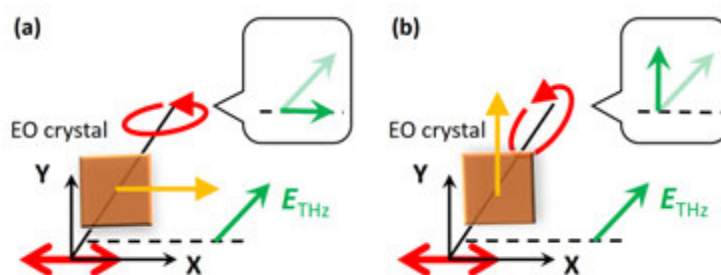


図 1.4: EO 結晶の結晶軸と EO 結晶透過後のプローブ光から得られるテラヘルツ電場ベクトル成分の関係。EO 結晶の結晶軸が (a) X 軸と平行な時 (b) X 軸と垂直な時の配置図。(a) の配置ではテラヘルツ電場ベクトルの X 成分が (b) の配置では Y 成分が測定できる。赤い両矢印 (緑色の矢印) は直線偏光のプローブ光 (テラヘルツ電場ベクトル) を表す。オレンジ色の矢印は EO 結晶の結晶軸の向きを表す。

方向と平行な方向 (X 軸) に向ける。この時、EO 結晶透過後の楕円偏光のプローブ光から電場ベクトルの X 成分の情報を得ることができる。また図 1.4(b) に示すように EO 結晶の結晶軸をプローブ光の偏光方向と垂直な方向 (Y 軸) に向ける。この時はプローブ光から電場ベクトルの Y 成分の情報を得ることができる。このように EO 結晶の結晶軸とプローブ光の偏光方向が  $0^\circ$  または  $90^\circ$  の時、EO 結晶はテラヘルツ電場の偏光子のように機能する [13]。この測定手法は結晶の対称性を利用する為、Zinc-blende 型の EO 結晶であれば、どの結晶 (ZnTe、GaP、GaAs など) を使用しても用いることができる。本手法ではアンテナや WG 偏光子のような周波数帯域が狭いデバイスを使用することなく電場ベクトル測定が可能という長所がある。先ほどの 230 THz までの直線偏光の電場ベクトル波形計測例 [10] に於いても EO 結晶を使用している。今後、結晶の対称性を利用すればテラヘルツ周波数帯から近赤外領域までの幅広い周波数帯で楕円偏光の電場ベクトル波形測定への応用も可能である。

さて代表的な偏光測定手法について説明したが、本論文では『IV. 電気光学結晶の対称性を用いた偏光測定手法』を使用した。その理由は前述した通り、異なる結晶を使用しても同じような偏光測定ができ、結晶を選べば中赤外・近赤外の電場ベクトル波形測定にも拡張することができるからである。次節では、楕円偏光の電場ベクトル波形を測定できると、どのような応用が期待されるのか、説明する。

## 1.4 テラヘルツ電場ベクトル波形計測の応用例

本節では楕円偏光の電場ベクトル波形を測定できると、どのような応用が期待されるのか、説明する。一般的に非線形光学結晶などを使用してテラヘルツ電場を発生させると、図 1.3(a) のような直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形が測定される。この波形を周波数分解して各周波数成分の電場軌跡を求めると、全ての周波数成分の電場軌跡が図 1.5(a) に示すような直線の軌跡になる。

一方で、この直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形を複屈折性や円偏光二色性のある試料に入射させると図 1.3(b) のような楕円偏光の電場ベクトル波形になる。楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形をフーリエ変換などの周波数解析によって周波数分解すると、偏光状態は各周波数成分で異なり、直線、円、楕円偏光などの様々な偏光状態になる (図 1.5(a)-(c) 参照)。以上のように複屈折性や円偏光二色性のある試料がない時とある時のテラヘルツ電場の偏光状態を比較することで試料の偏光応答の周波数依存性を測定すること、つまり偏光分光が可能になる。偏光分光が可能になると円偏光二色性 (Circular dichroism: CD) 測定ができる。CD とは試料の右回り円偏光と左回り円偏光の吸光度の差スペクトルを測定する手法である。CD 測定は、溶解度などの物理的性質が等しいにも関わらず生体反応が異なるエナンチオマー同士の分別に有用な手法である [23]。既存の CD 測定系はフーリエ変換

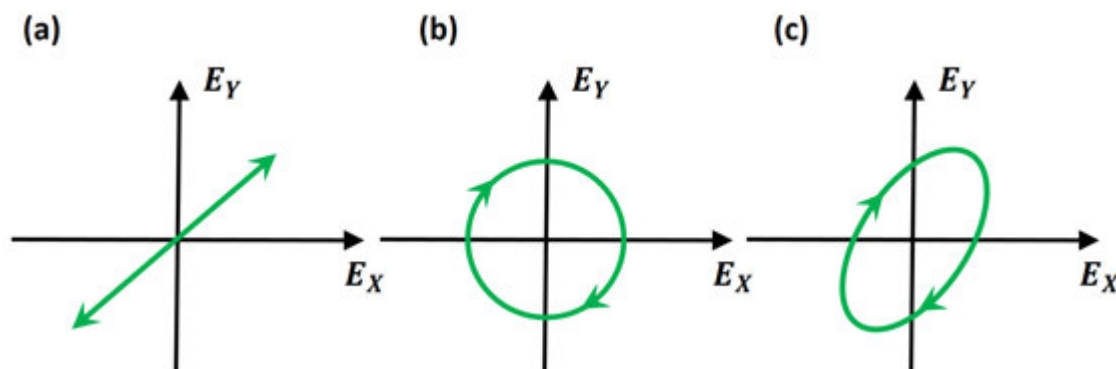


図 1.5: (a) 直線偏光、(b) 円偏光、(c) 楕円偏光の電場の一例。電場の軌跡が直線、円、楕円になる電場の偏光状態をそれぞれ直線偏光、円偏光、楕円偏光という。上の 3 つの電場では単色光を仮定しており、一般にパルス光の電場の軌跡は螺旋になる。

赤外分光 (Fourier transform infra-red spectroscopy: FT-IR) 測定系に光弾性変調器を設置したものが一般的である。この測定系では光弾性変調器により偏光状態を左右円偏光に変調し、左右円偏光の吸収スペクトルの差分を取ることで CD スペクトルを得る。この測定系で特に問題になるのが低周波数 (およそ  $700\text{ cm}^{-1}$  以下) 領域で利用できる受光器、偏光子、光弾性変調器を用意することである [24]。一方、電場ベクトル波形計測では、測定対象となる低周波数の電場の情報を非線形光学効果を用いて周波数の高い近赤外のプローブ光に付与して近赤外のプローブ光だけを検出するので、近赤外領域の豊富な素子を使用して偏光測定を行うことができるという長所がある。

しかし、EO 結晶を使用した電場ベクトル波形計測にも問題点がある。次節ではそれについて説明を行う。

## 1.5 電気光学結晶の対称性を利用した電場ベクトル波形計測の問題点

THz-TDS では図 1.2 に示した通り、近赤外のプローブ光と時間的に重なる低周波数の電場ベクトルの情報が得られる。問題となるのは近赤外のプローブ光と時間的に重なる電場ベクトルが EO 結晶内部で時々刻々と変化してしまうことである。この現象について順を追って説明する。一般に EO 結晶に限らず物質の屈折率は周波数に依存する。その為、物質内の電磁波の伝搬速度も周波数に依存し、周波数の異なるプローブ光とテラヘルツ波の EO 結晶内部の伝搬速度は一般に異なる。その為、プローブ光と時間的に重なる電場ベクトルが EO 結晶内部で時々刻々と変化する。図 1.7 に EO 結晶内部を伝搬するプローブ光とテラヘルツ波の様子を示す。このように周波数の異なるプローブ光とテラヘルツ波の伝搬速度が異なる現象は位相不整合があると表現される。

この位相不整合の効果が初めて問題となったのは、テラヘルツ波の発生・検出に成功する以前、1961 年に Franken らが第二高調波発生に成功した [25] 後である。第二高調波発生では周波数  $f$  の光は非線形光学結晶内部を伝搬しつつ、結晶内部の各場所で周波数  $2f$  の非線形分極を作る。そして、この非線形分極が発生した場所を波源とする周波数  $2f$  の電場を作る。各波源で発生した周波数  $2f$  の電場は干渉し、全体として干渉が強め (弱め) 合う時は発生効率が大きく (低く) なる。周波数  $f$  と  $2f$  の屈折率の差が小さければ小さいほど干渉が強め合い第二高調波の発生効率も高くなる。

EO 結晶を使用した THz-TDS 測定を考える上でも、同様の議論が成り立つ。議論を簡単にする為、近赤外の超短パルスのプローブ光は形を変えず EO 結晶内部を、一定の群速度で進むと考える。また測定対象のテラヘルツ電場ベクトル波形は直線偏光とする。この場合、測定対象のテラヘルツパルスに含まれる周波数  $f'$  の検出効率はプローブ光の群屈折率と周波数  $f'$  の屈折率の差が小さいほど高くなる。テラヘルツ周波数領域には結晶のフォノン共鳴があり [26]、屈折率は周波数に強く依存する為、



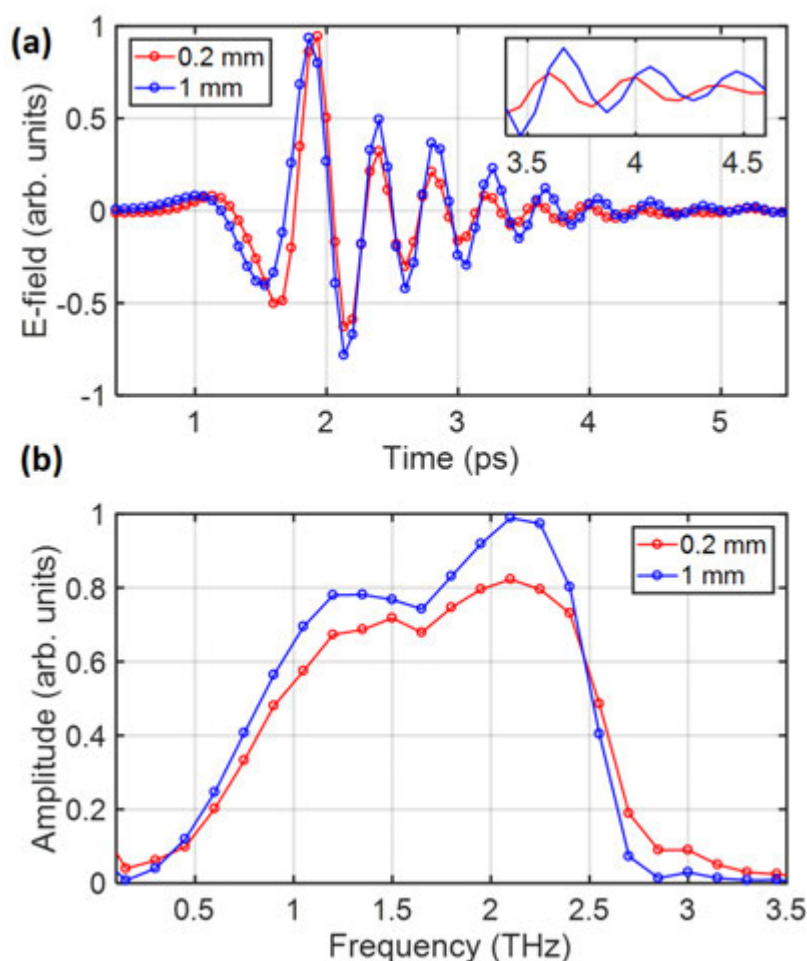


図 1.6: 直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形を二種類の EO 結晶 (0.2 mm ZnTe 結晶と 1 mm ZnTe 結晶) で測定した時の (a) 電場ベクトル波形と、(b) そのスペクトル。測定対象の波形が共通であっても使用する EO 結晶を変えるだけで測定結果が変わってしまう。(a) の挿入図は 3.4~4.6 ps の波形の拡大図であり、結晶が厚い方が振動成分が長く続くことが分かる。(a), (b) ともに最大値を 1 に規格化して表示している。

テラヘルツ波の検出効率も周波数に強く依存する。一般に EO 結晶に入射する直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形は様々な周波数の電場を含んだパルス波形であるので、検出効率が高い周波数の電場も検出効率が低い周波数の電場も含む。このように検出効率に、周波数依存性があることが EO 検出法の問題点である。その為、空气中を伝搬するテラヘルツ電場ベクトル波形を正しく測定することができない。このことを端的に示す結果を、図 1.6 に示す。図 1.6(a) は空气中を伝搬するテラヘルツ電場ベクトル波形を二種類の EO 結晶、それぞれを用いて測定した結果である。二つの波形は使用した EO 結晶の厚さ以外、全ての測定条件が共通である為、二つの波形の違いは EO 結晶の厚さによるのみ由来する。結晶が厚くなると、位相不整合の効果が大きくなり波形が歪んでいく。図 1.6(b) から分かる通り、厚い方の ZnTe 結晶 (1 mm) を用いた時では、位相整合が比較的良好に取れる 1.8~2.2 THz の検出効率が一際高くなっていることが分かる。このように EO 検出法により、テラヘルツ電場ベクトル波形を測定する場合、位相不整合による検出効率の周波数依存性は重大な問題になる。そこで先行研究では EO 結晶を使用した時の検出効率の周波数依存性を補正することで、正確な電場波形の復元が試みられてきた [26–31]。

しかし、以上の説明は測定される電場波形が直線偏光の場合である。直線偏光の為、時刻、位置に

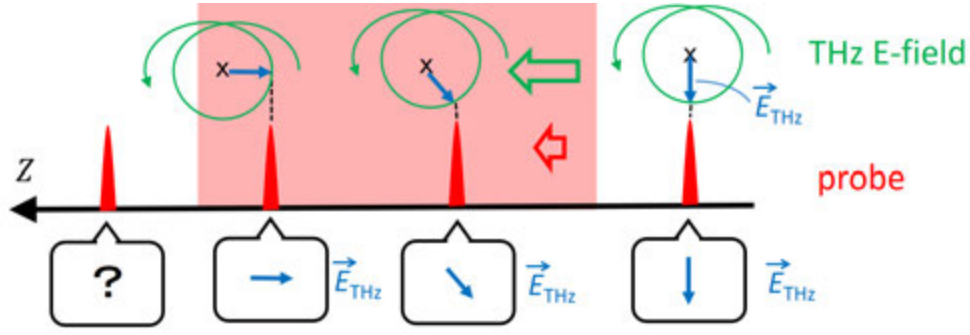


図 1.7: EO 結晶内での位相不整合の様子。緑色の螺旋が測定される電場ベクトル波形を、赤いパルス光がプローブ光パルスを、薄い赤色の長方形が EO 結晶を表している。緑色の矢印は電場ベクトル波形の、赤色の矢印はプローブ光パルスの、EO 結晶内での伝搬速度を示している。吹き出し内の矢印はその地点でプローブ光パルスと時空間的に重なる電場ベクトル波形の電場ベクトルを表す。位相不整合があると、プローブ光パルスと重なる電場ベクトルの向きと大きさが時々刻々と変化してしまう。

依らず電場ベクトル波形の電場ベクトルの向きは常に一定である。この状況下ではプローブ光の群速度とテラヘルツ波の位相速度が異なっているが、プローブ光と時空間的に重なる電場ベクトルの向きは常に一定である。非線形光学効果の効率は周波数と偏光（電場ベクトルの向き）に依存するが、偏光（電場ベクトルの向き）は常に一定であり考慮する必要がなかった。

一方で測定対象が楕円偏光の場合、非線形光学効果の効率は周波数と偏光（電場ベクトルの向き）に依存するので周波数と偏光（電場ベクトルの向き）の両方を考慮しないといけない。図 1.7 は位相不整合がある場合の EO 結晶内部でのプローブ光パルスと測定対象の電場ベクトル波形の伝搬の様子を表す。プローブ光の伝搬速度と測定対象のテラヘルツ電場の伝搬速度が異なる為、プローブ光と時空間的に重なる電場ベクトルの向きと大きさが時々刻々と変化し、検出効率もそれに伴って複雑に変化する。

更にテラヘルツ電場の周波数を考慮すると状況は一層、複雑になる。テラヘルツ帯の屈折率  $n(\Omega)$  は角周波数  $\Omega$  に依存する為、テラヘルツ電場の伝搬速度  $c/n(\Omega)$ 、つまりは位相不整合も周波数に依存するからである。実際に EO 結晶として最もよく使用されている ZnTe 結晶を用いた場合について考えてみる。図 1.8 に厚さ 1 mm の ZnTe 結晶を使用した時の位相不整合の様子を示す。図 1.8(a)~(d) では簡略化の為、テラヘルツ電場は単色光の円偏光電場であると仮定しており、EO 結晶の表面ではプローブ光は角度  $0^\circ$  のテラヘルツ電場ベクトルと空間的に重なっている。EO 結晶内での位相不整合により、プローブ光が EO 結晶の裏面に到達した際の角度は一般に  $0^\circ$  にならない。裏面に到達した際の角度は以下に示すようにテラヘルツ帯の屈折率  $n(\Omega)$ 、プローブ光パルスの群屈折率  $n_g$ 、EO 結晶の厚さを用いて記述することができる。

$$\frac{(n_g - n(\Omega))\Omega l}{c} \quad (1)$$

文献 [27] の ZnTe 結晶の屈折率を使用すると周波数 1、1.75、2、3 THz の電場を検出する場合では、それぞれ図 1.8(a), (b), (c), (d) に示すように、裏面まで到達する間に  $30^\circ$ 、 $0^\circ$ 、 $-24^\circ$ 、 $-384^\circ$  だけ電場ベクトルが回転する。ほぼ位相整合条件が満たされる 1.75 THz 周辺を除くと、プローブ光と時空間的に重なる電場ベクトルの向きが大きく変化しており、更にその位相不整合の状態がテラヘルツ波の周波数に依存している。

更にもう一つ考慮すべき問題として、プローブ光パルスのパルス幅  $\tau_p$  がある。たとえ位相整合条件が完全に満たされていても、プローブ光パルスがデルタ関数のように非常に細いパルスではない場合、有限のパルス幅  $\tau_p$  の中で楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形の向きが変わってしまう。図 1.9 に、本論文の測定で使用するプローブ光 ( $\tau_p = 100$  fs) の内部で、周波数 1 THz の円偏光のテラヘルツ波の電場ベクトルがどれ位、回転するのか、見積もった結果を示す。周波数 1 THz テラヘルツ波の周期は 1 ps であり、パルス幅は  $\tau_p = 100$  fs である為、プローブ光パルスの内部で  $\lambda/10$ 、つまり  $36^\circ$  ほど電場

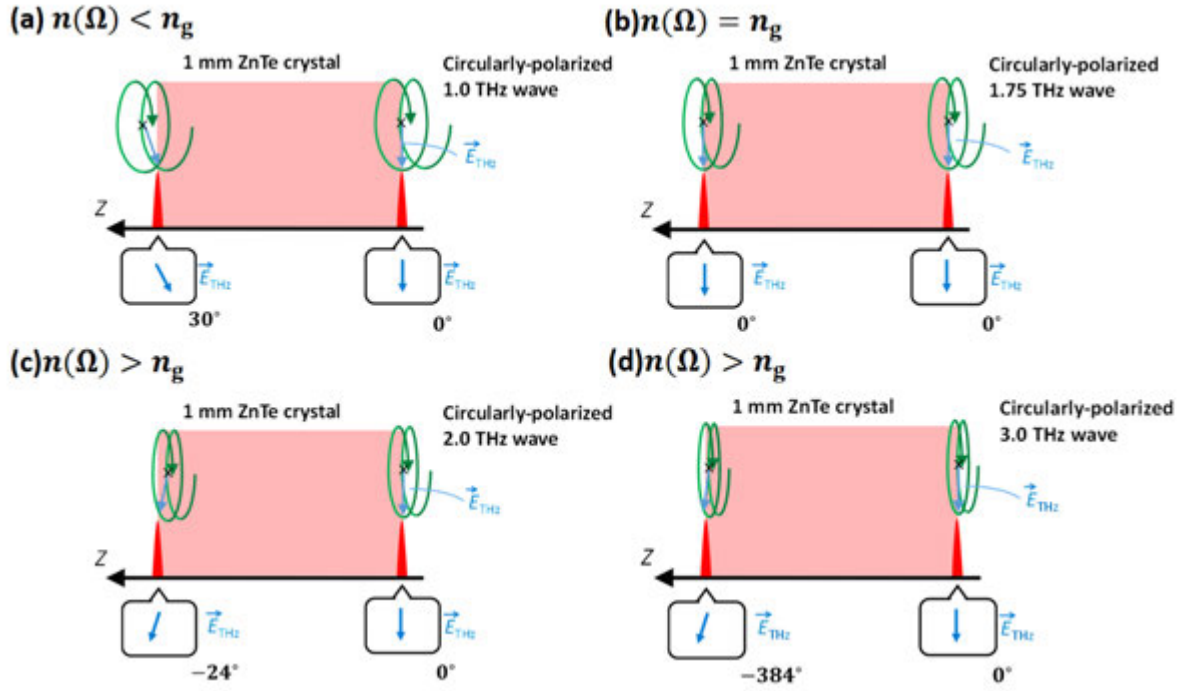


図 1.8: 厚さ 1 mm の ZnTe 結晶を使用した時の位相不整合の様子。簡略化の為、テラヘルツ電場は単色光の円偏光電場であると仮定している。テラヘルツ周波数領域では屈折率が周波数に強く依存する為、検出されるテラヘルツ電場の周波数によって位相不整合の様子が大きく変わる。ZnTe 結晶の屈折率は文献 [27] の値を使用した。

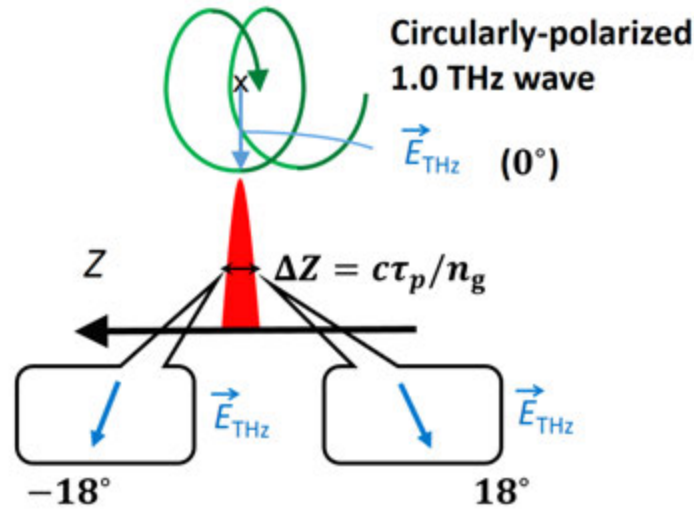


図 1.9: 有限のパルス幅  $\tau_p$  を持つプローブパルス光内部で、偏光方向を変えるテラヘルツ電場ベクトルの様子。プローブパルス光の内部で偏光方向が変わってしまう為、測定から得られるテラヘルツ電場ベクトルの向き (偏光方向) の解釈ができない。簡略化の為、テラヘルツ電場は単色光 (1.0 THz) の円偏光電場であると仮定している。

ベクトルの向きが変化してしまう。このように楕円偏光テラヘルツ電場を検出する場合、EO 結晶内部の位置に応じて、またプローブ光パルスの内部で電場ベクトルの向きが変化してしまう。これは直線偏光のテラヘルツ電場を検出する際には存在しなかった問題である。

しかし、先行研究 [26–31] では直線偏光の電場波形のみを測定対象としている。その為、電場ベクトルの向きが測定中に変化する、という状況は全く想定されていない。従って楕円偏光の電場ベクトル波形を測定した時の検出効率の周波数、偏光依存性などをモデル化し、正しい電場ベクトル波形の復元方法を確認する必要がある。

## 1.6 本論文の目的と構成

そこで本研究では、EO 結晶の対称性を利用して測定された電場ベクトル波形について議論・解釈ができるような理論の構築を行い、それを実験検証することを目的とする。図 1.10 に本論文の第 2 章以降の構成を示す。まず第 2 章ではテラヘルツ電場ベクトル波形の測定方法や位相不整合下で測定された直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形の解釈などに関する先行研究を紹介する。本論文の主要部分である第 3–5 章の研究成果は第 2 章で紹介した先行研究の上に成り立つ成果であるので、先行研究を通じて本論文の立ち位置を明確にする上で有益な情報である。

第 3 章～第 5 章が主に学術論文に投稿した内容に対応しており、本論文の主要部分である。また各章が投稿済の論文一本一本に対応している。この三つの章では、まず本章の構成 (目的) から始まり、理論構築を行い、理論構築結果の実験検証を行い、最後にまとめを述べるという流れに統一している。各章ともに理論構築の計算が長く続くので、実験検証の前に理論構築の結論という一節を設けている。実験検証は基本的に理論構築の結論を支持する実験結果が得られるか検証したものであるので、理論構築の結論を読めば理論構築と実験検証の主な内容は分かるはずである。それでは、第 3 章～第 5 章の各章について説明する。

第 3 章では EO 結晶の対称性を用いて測定された電場ベクトル波形の周波数領域での解釈について論じる。図 1.3 に示した電場ベクトル波形をフーリエ変換すると図 1.5 のような単一周波数成分の電場の軌跡 (一般には楕円の形をしている) が得られる。しかし、EO 検出法では電場ベクトル波形を正確に測定することはできない。また使用する EO 結晶を変えると位相不整合の状態が変わる為、測定さ

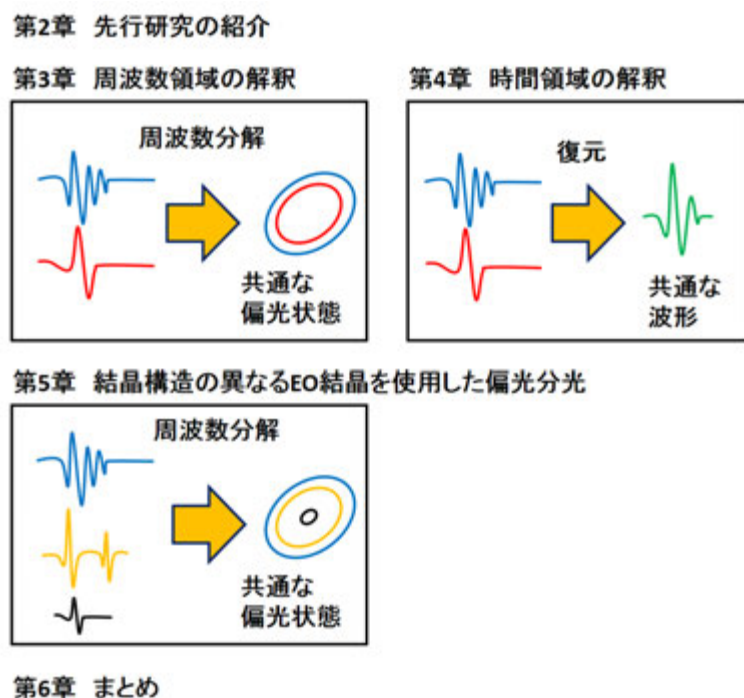


図 1.10: 本論文の第 2–6 章の構成。



れる電場ベクトル波形の形も変わってしまう。では、その不正確な波形を周波数分解して、各周波数成分の偏光状態を正確に求めることは可能なのか？という疑問が出てくる。第 3 章の結論は『不正確な波形を単純に周波数分解するだけで各周波数成分の偏光状態を正確に求めることは可能である』という事である。

第 4 章では EO 結晶の対称性を用いて測定された電場ベクトル波形を解釈する。繰り返すが、使用する EO 結晶を変えると測定される電場ベクトル波形の形が変わってしまう。これは位相不整合 (複素屈折率の実部や結晶の厚さに依存) や吸収の大きさが個々の EO 結晶ごとで異なるからである。では EO 結晶の複素屈折率や結晶の厚さをパラメーターとして、測定された不正確な電場ベクトル波形から実際に空气中を伝搬する波形を復元することはできないだろうか？というのが第 4 章のモチベーションである。実験検証では、まず 3 種類の EO 結晶を用意して同じ電場ベクトル波形を計測し、3 つの異なるベクトル波形から共通の電場ベクトル波形を復元することに成功した。

第 5 章では結晶構造の異なる EO 結晶を使用して、第 3 章と同様に偏光分光を行う。第 3、4 章では EO 結晶として最もよく使用されている ZnTe、GaP 結晶のみを使用していた。しかし近年では、様々な種類の EO 結晶が使用されている。これは最適な EO 結晶を選択することで、中赤外や近赤外などの他の波長帯での波形計測が可能になるからである。中赤外や近赤外域で最適な EO 結晶は一般的な ZnTe、GaP 結晶とは結晶構造が異なる為、第 3、4 章の成果をそのまま適用することはできない。そこで第 5 章では、第 3、4 章の記述を拡張することで結晶構造の異なる EO 結晶を使用した場合にも適応できることを示す。2017 年現在に於いても新しい EO 結晶の開発は進んでおり [32]、今後も続くであろう。そうした新しい EO 結晶を使用してベクトル波形計測を行う上で第 5 章の内容は有益な一例となるであろう。

第 6 章では本論文のまとめを述べる。第 3~5 章で記述しなかった一部の成果については付録で説明する。



## 1.7 略語一覧と変数一覧

本論文で使用する略語、及び変数の一覧表を読者の利便性の為に載せる。

表 1.1: 使用する変数の一覧表 1

変数の種類	変数	定義
座標系	$\hat{X}$	プローブ光の偏光方向
	$\hat{Y}$	$\hat{X}$ と垂直な方向
	$\hat{Z}$	テラヘルツ波とプローブ光の伝搬方向。 $\hat{X} \times \hat{Y}$ と等しい
	$\hat{u}$	楕円偏光テラヘルツ電場の長軸の向き ( $\hat{X}, \hat{Y}$ とは同一平面上)
	$\hat{v}$	楕円偏光テラヘルツ電場の短軸の向き ( $\hat{X}, \hat{Y}$ とは同一平面上)
	$\hat{w}$	楕円偏光テラヘルツ電場の伝搬方向 ( $\hat{u} \times \hat{v} = \hat{w}$ で、 $\hat{Z}$ と平行)
	$\hat{x}$	非線形光学結晶の $\langle 100 \rangle$ 方向
	$\hat{y}$	非線形光学結晶の $\langle 010 \rangle$ 方向
	$\hat{z}$	非線形光学結晶の $\langle 001 \rangle$ 方向
周波数	$\Omega$	テラヘルツ波の角周波数 (テラヘルツ周波数領域)
	$\omega_2$	プローブ光の角周波数 (近赤外領域)
	$\omega_3$	和周波・差周波発生電場の角周波数 (近赤外領域)
	$\omega_4$	差周波発生電場の角周波数 (先行研究中的のみで使用)
	$\omega_0$	プローブ光の中心角周波数 (近赤外領域)
	$\Delta\omega$	プローブ光の角周波数幅 ( $\Delta\omega \ll \omega_0$ )
	$\omega_{\text{EO}}$	電気光学結晶の回転角周波数 ( $2\pi \times 80$ Hz)
角度	$\varphi$	電気光学結晶の結晶軸と $\hat{X}$ のなす角度
	$\gamma$	テラヘルツ電場ベクトルと $\hat{X}$ のなす角度
	$\alpha$	EO 結晶に印加された複屈折の遅軸と $\hat{X}$ のなす角度
	$T$	測定中での時間 ( $\varphi(T) = \omega_{\text{EO}}T + \varphi_0$ )
	$\varphi_0$	時刻 $T = 0$ での角度 $\varphi$ の初期角度
	$\Psi$	$\hat{u}$ と $\hat{X}$ のなす角度 ( $\Omega$ の関数)
	$\theta$	楕円偏光テラヘルツ電場の楕円率角 ( $\Omega$ の関数)
長さ	$l$	電気光学結晶の厚さ
	$l_c$	コヒーレンス長

前ページに収まらなかった変数の一覧表の続きを載せる。

表 1.2: 使用する変数の一覧表 2(続き)

電場	$Z$	位置 $Z$ 、電気光学結晶の表面を $Z = 0$ 、裏面を $Z = l$ とする
	$\tau$	遅延ステージによる遅延時間
	$t$	時刻 $t$
	$k^R$	実数の波数
	$\beta$	吸収係数
	$k$	複素数の波数 ( $k \equiv k^R + i\beta$ )
	$c$	真空中の光速
	$n_g$	プローブパルスの群屈折率
	$v_g$	プローブパルスの群速度 ( $v_g \equiv c/n_g$ )
	$\tau_p$	プローブパルスのパルス幅 (100 fs)
	$E_{\text{THz}}$	テラヘルツ電場の大きさ
	$\phi$	時刻 $t = 0$ における初期位相
	$d$	2 次の非線形光学テンソルの成分
	$\chi^{(2)}$	2 次の非線形光学テンソルの成分 ( $\chi^{(2)} \propto d$ )
	$A$	長軸方向の電場振幅 ( $A = A' \exp(ikZ) = 1/2 A'' \exp(ikZ + i\phi)$ )
	$B$	短軸方向の電場振幅 (直線偏光なら $B = 0$ で、 $B''$ , $B'$ との関係は $A$ と同様)
関数	$\mathbf{E}$	電場ベクトル
	$f$	テラヘルツ電場の検出効率を表す ( $\Omega$ の関数で複素数)
	$F$	テラヘルツ電場の検出効率を表す ( $\Omega$ の関数で実数)
	$I_{\text{OPT}}$	プローブパルスの包絡線を表す
	$a$	位相不整合の大きさを表す ( $\Omega$ の関数)
	$g$	省略の為に導入した関数
	$H''$	省略の為に導入した関数 ( $H'' = H_R'' + H_I''$ )
	$Q$	Quarter wave plate のジョーンズ行列
	$Z$	複屈折板のジョーンズ行列
	$C$	複屈折板の遅軸と速軸間の位相差
	$R$	回転行列
	$S$	バランス検出信号
	$\xi_i$	バランス検出信号の変調成分 ( $i = 1 - 4$ )

最後に略語の一覧表の続きを載せる。

表 1.3: 使用する略語の一覧表

光学素子	BD	Balanced detector
	BS	Beam Splitter
	EOC	Electro-optic crystal
	EOM	Electro-optic modulator
	NLC	Nonlinear optic crystal
	OPM	off-axis parabolic mirror
	PEM	Photoelastic modulator
	QWP	Quarter wave plate
	WP	Wollaston prism
その他	THz	Terahertz
	THz-TDS	Terahertz time-domain spectroscopy

## 第2章 テラヘルツ時間領域分光法の先行研究

### 2.1 本章の構成 (先行研究の紹介)

本章の構成を図 2.1 に示す。まず第 2.2 節ではテラヘルツ波の電場波形の測定方法である、テラヘルツ時間領域分光法 (Terahertz time-domain spectroscopy: THz-TDS) について説明する。次に第 2.3、2.4 節では THz-TDS 測定系で用いられるテラヘルツ波の発生・検出方法について説明する。発生・検出方法には光伝導アンテナ、非線形光学結晶 (EO 結晶)、空気プラズマなどを利用する方法がある。本論文では EO 結晶を用いてテラヘルツ波の発生・検出を行う為、EO 結晶を用いた THz-TDS 測定系についてのみ説明を行う。第 2.4 節では楕円率角、旋光角やストークスパラメーターなどの偏光パラメーターについて説明する。これらの偏光パラメーターは、測定された電場ベクトル波形の偏光状態を記述するのに有用である。ポアンカレ球を用いた偏光解析は試料の偏光応答を視覚的に理解するのに役立つ為、これも併せて説明する。

次に第 2.5 節では EO 結晶内部でのテラヘルツ波と近赤外のプローブ光パルスの位相不整合について論じた先行研究を紹介する。電場ベクトル波形を測定する際、測定される波形の形は位相不整合の効果によって大きく変わってしまう。よって本研究の主題である電場ベクトル波形の解釈を行う為には位相不整合の理解が必須である。電場波形を解釈するモデルとして、大きく分けて以下の 2 つのモデルがある。ポッケルス効果による複屈折描像とテラヘルツ波と近赤外のプローブ光の和周波・差周波数発生を用いる周波数混合描像である。第 2.5.1 節では前者について、第 2.5.2 節では後者について述べる。筆者は後者の周波数混合描像による波形解釈の方が、より正確に測定波形を解釈することができると考えている為、第 3-5 章では周波数混合描像に基づいて議論を進める。本章の最後、第 2.6 節では、周波数混合描像を用いないと記述できない測定手法について説明する。この測定手法に関する先行研究の結果は周波数混合描像の方がポッケルス効果による複屈折描像よりも優れた描像であるという考えを支持する結果であると思われる。

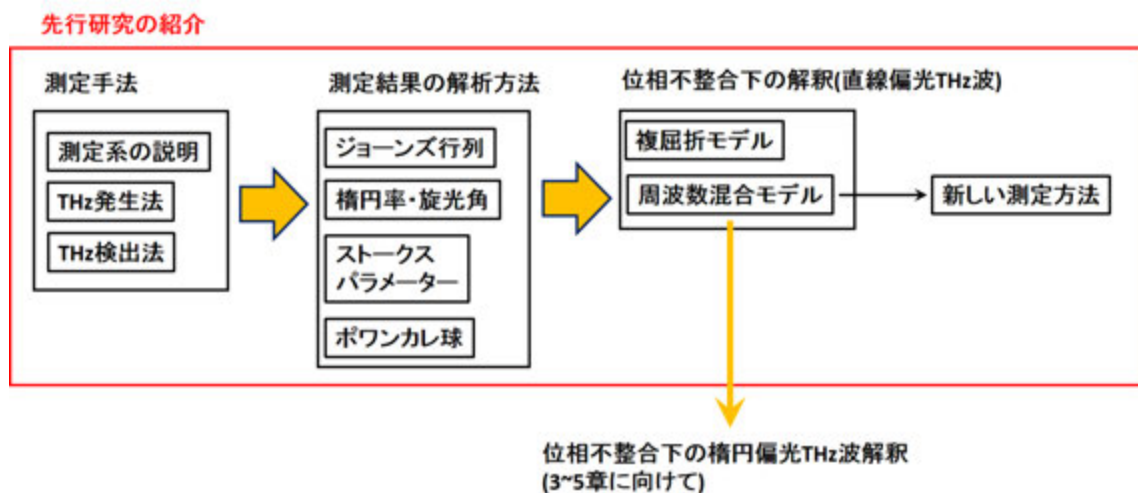


図 2.1: 本論文の 2 章の構成。

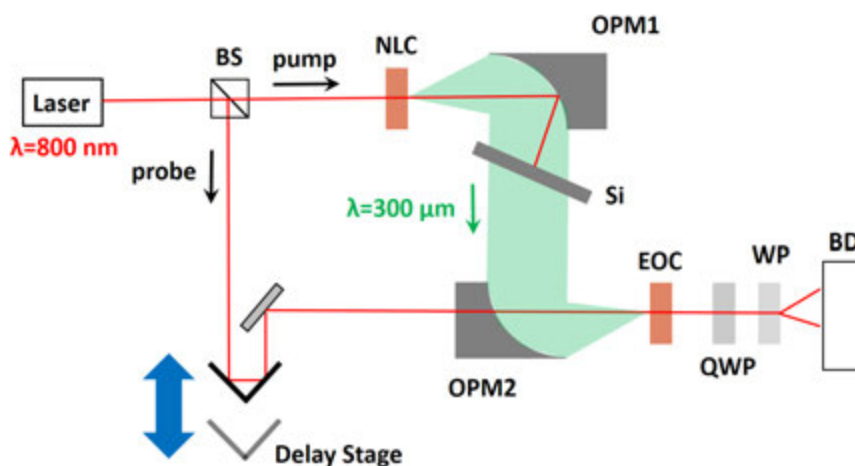


図 2.2: テラヘルツ時間領域分光法の測定系概略図。近赤外の超短パルスレーザーからテラヘルツ波 (図中では緑色で表示) を発生させ、最後にテラヘルツ波を近赤外光に戻して受光器で検出する測定系である。遅延ステージを操作することでテラヘルツ波の電場波形をなぞることができる。BS: Beam Splitter, NLC: Nonlinear optics crystal, OPM: Optical parabolic mirror, Si: Silicon plate, QWP: Quarter wave plate, WP: Wollaston prism, BD: Balanced detector

## 2.2 テラヘルツ時間領域分光法の測定系

まず測定系の概略図を図 2.2 に示す。まずレーザー光源から出射した光を Beam Splitter (BS) を用いて 2 つに分解する。1 つはポンプ光としてテラヘルツ波の発生に、もう 1 つはプローブ光としてテラヘルツ波の検出に使用される。まずポンプ光の光路について説明する。ポンプ光は非線形光学結晶 (Nonlinear optics crystal: NLC) に入射される。この時、ポンプ光のごく一部の光が近赤外光からテラヘルツ波へと変換される。この変換方法を光整流法といい、詳しくは次節の第 2.3 節で説明する。図 2.2 ではテラヘルツ波は緑色で示した。発生したテラヘルツ波は球面波として広がっていくので 1 つ目の軸外し放物面鏡 (off-axis parabolic mirror: OPM) を用いて平面波にする。テラヘルツ波に変換されなかったポンプ光は高抵抗シリコン板 (Si) によって遮断する。テラヘルツ波は高抵抗シリコン板を透過するので、そのまま空气中を伝搬していく。最後に 2 つ目の OPM を使用してテラヘルツ波を EO 結晶上に集光する。

次にプローブ光の光路について説明する。プローブ光は遅延ステージを通して EO 結晶 (EO) に入射される。遅延ステージを走査するとプローブ光の光路長が変化するので、テラヘルツ波とプローブ光の相対遅延を調整することができる。第 1 章の図 1.2 で示した通り、テラヘルツ波とプローブ光の相対遅延時間を調整することでテラヘルツ電場波形を測定することができる。EO 結晶透過後のプローブ光はバランス検出という手法で検出される。このバランス検出信号を解析することでテラヘルツ波の電場振幅を測定することができる。詳しくは 2.4 節で説明する。また本論文の実験検証にて、測定系全体の詳細な説明をもう一度行う。

## 2.3 非線形光学結晶を利用したテラヘルツ波の発生方法

本節では図 2.2 の NLC にポンプ光を入射した際にテラヘルツ波が発生する過程 (光整流法) について説明する。ポンプ光は電場尖頭値が大きい超短パルスレーザー光であるのでポンプを NLC に入射させると、NLC の内部で非線形分極  $\mathbf{P}_{NL}$  が発生する。非線形分極  $\mathbf{P}_{NL}$  が作るテラヘルツ電場  $\mathbf{E}_{THz}$

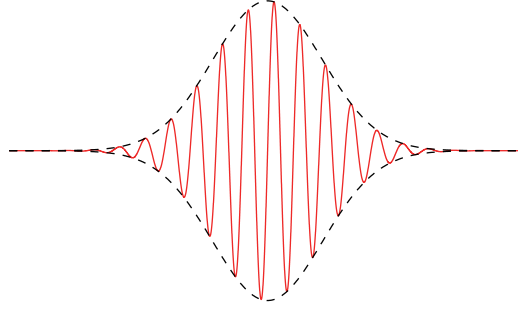


図 2.3: 超短パルスレーザー光のパルス形。黒い点線がガウシアン型の包絡線を、赤実線が式 (3) の  $E_{\text{pump}}(t)$  を表す。

の伝搬の様子は Maxwell 方程式を用いて以下のように記述できる。

$$\nabla^2 \mathbf{E}_{\text{THz}} = \varepsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}_{\text{THz}}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{\text{NL}}}{\partial t^2} \quad (2)$$

ここで  $\varepsilon_0$ 、 $\mu_0$  はそれぞれ真空中の誘電率、透磁率である。また超短パルスレーザー光であるポンプ光は以下のように搬送波 (キャリア)、包絡線に分けて考えることができる。

$$E_{\text{pump}}(t) = \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau_p}\right)^2\right] \exp(i\omega_0 t + i\phi(\omega_0)) \quad (3)$$

ここで  $\tau_p$  はプローブ光のパルス幅、 $\omega_0$  はプローブ光パルスの中心角周波数、 $\phi$  は初期位相を表し、式 (3) の第 1 の  $\exp$  項が包絡線、第 2 の  $\exp$  項がキャリアである。図 2.3 に超短パルスレーザー光のパルス波形を示す。 $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  には超短パルスレーザー光のキャリアが作る分極と包絡線が作る分極が含まれる。キャリアが作る分極はテラヘルツ波の周期と比べて非常に速く振動する為、テラヘルツ発生には寄与しない。一方、包絡線は 100 fs 程度のパルス幅を持つ為、その 2 階微分の振動周期はテラヘルツ波の周期とほぼ同じである。テラヘルツ波はこの超短パルス光の包絡線が作る非線形分極によって発生する [33]。

この方法で発生させることができるテラヘルツ波は直線偏光であり、その電場ベクトルの向きはポンプ光である超短パルス光の偏光方向と非線形光学結晶の結晶軸の向きによって決定される。テラヘルツ波発生によく使用される非線形光学結晶、例えば (110) 面が切り出された閃亜鉛型結晶を使用した際のテラヘルツ電場の向きについての議論は参考文献 [34] などに詳しい。

## 2.4 電気光学結晶を用いた電場ベクトル測定方法

本節では EO 検出法について説明する。これは図 2.2 で EOC と示した EO 結晶にテラヘルツ波とプローブ光を入射させ、テラヘルツ波を検出する手法である。本論文の実験・測定ではバランス検出器を使用した EO 検出法 (バランス検出) [35] のみ使用する為、本節でも同手法についてのみ言及する。図 2.4 にバランス検出の測定系概略図を示す。バランス検出では直線偏光のプローブ光はまず EO 結晶、Quarter wave plate(QWP) を透過する。その後、プローブ光の電場の X 成分 ( $E_X$ ) と Y 成分 ( $E_Y$ ) は Wollaston Prism(WP) という光学素子によって空間的に分離される。2 つの電場成分 ( $E_X$  と  $E_Y$ ) は別々のフォトディテクタで検出され、その電場強度の差 (バランス検出信号)  $S = |E_Y|^2 - |E_X|^2$  が検出される。図 2.4(a) に示した通り、テラヘルツ電場が EO 結晶に照射されていない時、直線偏光のプ

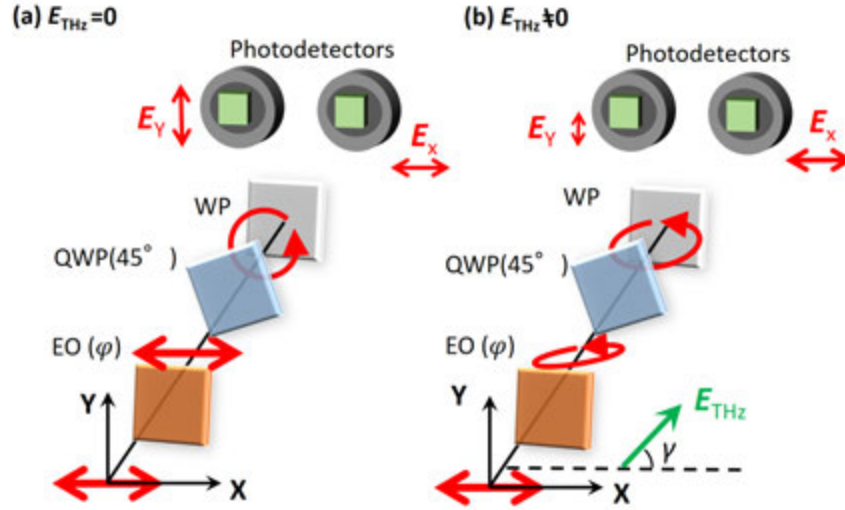


図 2.4: バランス検出の測定系概略図。(a) テラヘルツ電場がない場合 (b) テラヘルツ電場がある場合。(a) の場合はバランス検出信号  $S = |E_Y|^2 - |E_X|^2$  が 0 になり、(b) の場合は  $S$  がテラヘルツ電場の振幅に比例するように設計された測定系である。EO: Electro-optic crystal QWP: Quarter wave plate WP: Wollaston Prism を表す。EO, QWP のカッコ内の数字は複屈折の遅軸と X 軸のなす角度を表す。赤線・赤い楕円はプローブ光の偏光状態を表す。

プローブ光は偏光状態を維持したまま EO 結晶を透過する。その後、直線偏光のプローブ光は QWP によって円偏光になる。最後に円偏光電場の X, Y 成分の電場強度の差分が検出される。この時  $S = 0$  である。

一方で、テラヘルツ電場が EO 結晶に照射されている時は一般に  $S \neq 0$  となることを以下で説明する。まずテラヘルツ電場が EO 結晶に照射されたことで EO 結晶は複屈折を持つようになる。この現象を EO 効果またはポッケルス効果という。その為、図 2.4(b) に示した通り EO 結晶透過後のプローブ光は僅かに楕円偏光になる。この楕円偏光が QWP に入射すると、透過後の偏光状態は円偏光にならず、楕円偏光となる。その為、 $|E_Y| \neq |E_X|$  となり、WP 透過後のプローブ光をバランス検出すると  $S \neq 0$  となる。後ほど数式を用いて説明するが  $S$  はテラヘルツ電場ベクトルの大きさ  $E_{THz}$  とテラヘルツ電場ベクトルの向き (角度  $\gamma$ ) によって記述することができるので、バランス検出信号  $S$  から電場ベクトルの大きさと向きに関する情報を得ることができる。

それでは次節以降では実際にバランス検出信号  $S$  を計算する。まず 2.4.1 節ではバランス検出法で使用する偏光子・複屈折板などの偏光素子の働き、及びプローブ光の偏光状態の変化を記述する上で便利なジョーンズベクトル及びジョーンズ行列について説明をする。2.4.2 節ではジョーンズベクトル及びジョーンズ行列を用いてバランス検出信号  $S$  を求める。そして 2.4.3 節ではバランス検出信号  $S$  からテラヘルツ電場ベクトルの大きさ  $E_{THz}$  と向き (角度  $\gamma$ ) を得る為に本論文で用いた回転 EO 結晶法について紹介する。

### 2.4.1 ジョーンズベクトルとジョーンズ行列

本小節では、偏光状態を記述する上で便利なジョーンズベクトル及びジョーンズ行列について説明をする。ジョーンズ行列は、R. C. Jones による 1941 年 [36] 以降の一連の論文によって提案された偏光状態の記述方法である。

まず、座標系  $(X, Y, Z)$  系にて  $(X, Y)$  方向に振動し  $+Z$  方向に伝搬する波数  $k$ 、角周波数  $\omega$  の単色



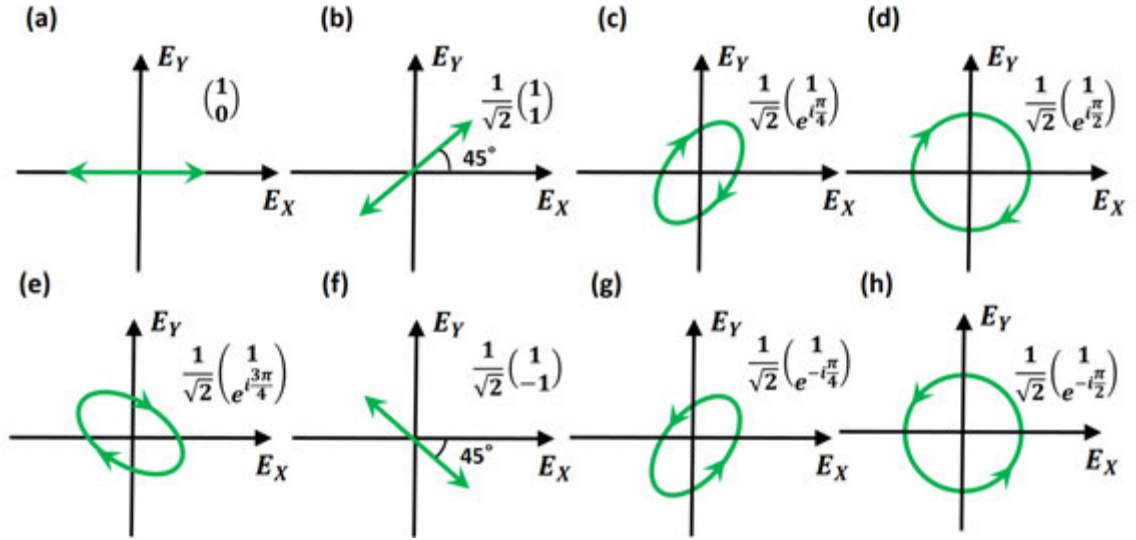


図 2.5: ジョーンズベクトルとそれに対応する偏光状態

光の電場波形  $\mathbf{E}(Z, t)$  を考える。この時、光の電場の X 成分と Y 成分は以下のように記述できる。

$$\mathbf{E}(Z, t) = E_0 \begin{pmatrix} E_X \exp(ikZ - i\omega t + i\phi_X) \\ E_Y \exp(ikZ - i\omega t + i\phi_Y) \end{pmatrix} \quad (4)$$

ここで  $E_0$  は電場振幅を、そして  $\phi_X$ 、 $\phi_Y$  はそれぞれ X, Y 方向の初期位相を表す。 $E_X$ 、 $E_Y$  は  $E_X^2 + E_Y^2 = 1$  を満たす実数である。ここで式 (4) のカッコ内から共通項  $\exp(ikZ - i\omega t)$  を取り除いたもの、即ち

$$\begin{pmatrix} E_X \exp(i\phi_X) \\ E_Y \exp(i\phi_Y) \end{pmatrix} \quad (5)$$

をジョーンズベクトルと言う。ジョーンズベクトルでは各ベクトル要素の絶対値が電場振幅を、各ベクトル要素の位相角 ( $\phi_X$ ,  $\phi_Y$ ) が電場の位相を表す。例えば  $\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ ,  $\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$  はそれぞれ X, Y 方向に振動する直線偏光を表わす。また円偏光では X, Y 成分間で  $\pm 90^\circ$  ( $\exp(\pm i\frac{\pi}{2}) = \pm i$ ) の位相差がある為、左右円偏光のジョーンズベクトルは  $\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \pm i \end{pmatrix}$  と表すことができる。図 2.5 にジョーンズベクトルとそれに対応する偏光状態を表す。次に複屈折板や偏光子などの偏光素子の偏光応答を記述できるジョーンズ行列について説明する。偏光素子透過前、透過後のジョーンズベクトルを  $\begin{pmatrix} u_1 \\ v_1 \end{pmatrix}$ ,  $\begin{pmatrix} u_2 \\ v_2 \end{pmatrix}$  とすると、偏光素子のジョーンズ行列は以下のような  $2 \times 2$  の行列で表現できる。

$$\begin{pmatrix} u_2 \\ v_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} J_{11} & J_{12} \\ J_{21} & J_{22} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} u_1 \\ v_1 \end{pmatrix} \quad (6)$$

例えば遅軸が X 軸方向に速軸が Y 軸方向に平行な QWP のジョーンズ行列は以下のように記述できる。

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \exp(-i\frac{\pi}{4}) & 0 \\ 0 & \exp(+i\frac{\pi}{4}) \end{pmatrix} \quad (7)$$



この QWP に偏光方向が X 軸から  $45^\circ$  傾いた直線偏光  $\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}$  を入射させると透過後の偏光状態は円偏光になることが予想される。実際に計算をしてみると

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \exp\left(-i\frac{\pi}{4}\right) & 0 \\ 0 & \exp\left(+i\frac{\pi}{4}\right) \end{pmatrix} \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1-i \\ 1+i \end{pmatrix} \quad (8)$$

となる。ここで X 成分  $1-i$  の位相は  $-\frac{\pi}{4}$  で Y 成分  $1+i$  の位相は  $+\frac{\pi}{4}$  で両者の位相差は  $+\frac{\pi}{2}$  ある。また振幅は等しいので QWP 透過後の偏光が円偏光になったことが分かる。QWP の遅軸が X 軸から角度  $\theta$  だけ傾いている一般的な場合では、QWP のジョーンズ行列  $Q(\alpha)$  は回転行列  $R(\alpha)$  を用いて

$$Q(\alpha) = R(-\alpha) \cdot \begin{pmatrix} \exp\left(-i\frac{\pi}{4}\right) & 0 \\ 0 & \exp\left(+i\frac{\pi}{4}\right) \end{pmatrix} \cdot R(\alpha) \quad (9)$$

と書ける。ここで回転行列  $R(\alpha)$  は以下の通りである。

$$R(\alpha) = \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & \sin(\alpha) \\ -\sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix} \quad (10)$$

次は遅軸が X 軸から角度  $\alpha$  だけ傾いており、遅軸と速軸の位相差が  $C$  の任意の複屈折板のジョーンズ行列  $Z(\alpha)$  を示す。 $Z(\alpha)$  は回転行列  $R(\alpha)$  を用いて、以下のように記述できる。

$$Z(\alpha) = R(-\alpha) \cdot \begin{pmatrix} \exp\left(-i\frac{C}{2}\right) & 0 \\ 0 & \exp\left(+i\frac{C}{2}\right) \end{pmatrix} \cdot R(\alpha) \quad (11)$$

次節ではジョーンズ行列を用いた計算により検出信号  $S$  を導出する。

### 2.4.2 電気光学信号の導出

1 次の EO 効果またはポッケルス効果とは、非線形光学結晶の両端に電極を貼り付け電圧を印加すると、その電界によって屈折率が等方的であった結晶が異方性を示す、つまり複屈折を示す結晶になる、という現象である。本節では、ポッケルス効果による複屈折描像を用いて EO 信号を導出する。

ジョーンズベクトル及びジョーンズ行列は式 (4) で定義したように本来、単色光の偏光状態を記述するものである一方、プローブ光パルスは様々な周波数成分を持つパルス光である。ここでは、プローブ光パルスの各周波数成分の偏光状態は周波数に依らず一定であると考え、中心角周波数  $\omega_0$  の偏光状態の変化を定式化し、EO 信号を導出する。

電場が印加されている時、EO 結晶は複屈折板となる為、この時の EO 結晶のジョーンズ行列は式 (11) を用いて表現することができる。したがって EO 結晶、QWP を透過した後のプローブ光のジョーンズベクトルは前節の結果を用いて以下のように記述できる。

$$\begin{pmatrix} E_X \\ E_Y \end{pmatrix} = Q\left(\frac{\pi}{4}\right) \cdot Z(\alpha) \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (12)$$

と書ける。ここで角度  $\alpha$  は式 (11) で定義したように基準軸 (X 軸) と複屈折板の遅軸のなす角度である。更にプローブ光は WP を透過して  $\begin{pmatrix} E_X \\ 0 \end{pmatrix}$  と  $\begin{pmatrix} 0 \\ E_Y \end{pmatrix}$  の 2 つの光に空間的に分解される。バランス

検出器で検出される信号  $S$  は  $S \propto |E_Y|^2 - |E_X|^2$  であるので、式 (12) を用いて、バランス検出信号  $S$  を計算すると、最終結果は以下のように記述できる。

$$S \propto |E_Y|^2 - |E_X|^2 \propto \sin(C) \sin(2\alpha) \quad (13)$$

ここで式 (11) に現れるパラメーター  $C$  を具体的に表すことにする。 $C$  は EO 結晶の複屈折に起因して付与される位相差である。よって  $C$  は以下のように、遅軸と速軸の屈折率の差  $\Delta n$ 、EO 結晶の厚さ  $l$ 、プローブ光パルスの中心周波数  $\omega_0$ 、光速  $c$  を用いて記述する事できる。

$$C = \omega_0 \frac{\Delta n l}{c} \quad (14)$$

一般に  $C \ll 1$  が成立するので  $\sin C \approx C$  とおける。電場ベクトルの向きを求めるには始めに基準となる軸を定義する必要がある、本論文では図 2.6 に示すように直線偏光のプローブ光の偏光方向である X 軸 ( $\hat{X}$ ) を基準軸と定める。テラヘルツ電場ベクトルと基準軸のなす角度を  $\gamma$  とし、式 (13) 中に含まれる角度  $\alpha$  とテラヘルツ電場ベクトルとプローブ光のなす角度  $\gamma$  の関係を求める必要がある。本研究では (110) 面が切り出された zinc-blende 型の EO 結晶を主に使用するの、ここではその結晶を使用した時の結果のみを示す [18, 37]。

$$\cos(2\alpha - 2\varphi) = -\frac{\sin(\varphi - \gamma)}{\sqrt{1 + 3\cos^2(\varphi - \gamma)}} \quad (15)$$

$$\sin(2\alpha - 2\varphi) = \frac{2\cos(\varphi - \gamma)}{\sqrt{1 + 3\cos^2(\varphi - \gamma)}} \quad (16)$$

$$\Delta n \propto E_{\text{THz}} \sqrt{1 + 3\cos^2(\varphi - \gamma)} \quad (17)$$

式 (15)、(16) の左辺には角度  $\alpha$  が含まれており、右辺には角度  $\gamma$  が含まれており、2 つの角度の関係を表す式となっている。また式 (16) は屈折率の差  $\Delta n$  とテラヘルツ電場の大きさ  $E_{\text{THz}}$  に比例関係がある事を示す式である。なお、他の結晶面を使用した時の記述は文献 [38] などに詳しい。これより式 (15)~(17) を用いて式 (13) を変形すればバランス検出信号  $S$  を以下に示すように  $E_{\text{THz}}$  と  $\gamma$  で記述することができる。

$$S \propto C \sin(2\alpha) \propto E_{\text{THz}} (\cos(\varphi + \gamma) + 3\cos(3\varphi - \gamma)) \quad (18)$$

式 (18) は EO 結晶を回転させるとテラヘルツ電場ベクトルを測定できる事を示している。EO 結晶を回転させて、角度  $\varphi$  を  $0^\circ$  に設定すると  $S \propto E_{\text{THz}} \cos(\gamma)$  となり、角度  $\varphi$  を  $90^\circ$  に設定すると  $S \propto E_{\text{THz}} \sin(\gamma)$  となり、テラヘルツ電場ベクトルの X, Y 成分を測定することができる。

### 2.4.3 回転電気光学結晶法

実際の測定では EO 結晶の結晶軸の向きもプローブ光の偏光方向も目視することができない為、角度  $\varphi$  を正確に  $0^\circ$  ( $90^\circ$ ) に設定することは難しい。そこで安松と渡邊らは正確な角度調整を行うことなくテラヘルツ電場の振幅と偏光方向を同時に測定できる回転電気光学結晶法を開発した [18]。本手法では EO 結晶を機械式の中空モーターに貼り付け回転させる。すると式 (18) 中の角度  $\varphi$  は  $\varphi(T) = \omega_{\text{EO}} T + \varphi_0$  となる。ここで  $\omega_{\text{EO}}$  はモーターの回転角周波数、 $\varphi_0$  は時刻  $T = 0$  での  $\varphi$  を表す。この時、バランス検出信号  $S$  は以下のように  $T$  の関数になる。

$$S(T) \propto E_{\text{THz}} (\cos(\omega_{\text{EO}} T + \varphi_0 + \gamma) + 3\cos(3\omega_{\text{EO}} T + 3\varphi_0 - \gamma)) \quad (19)$$

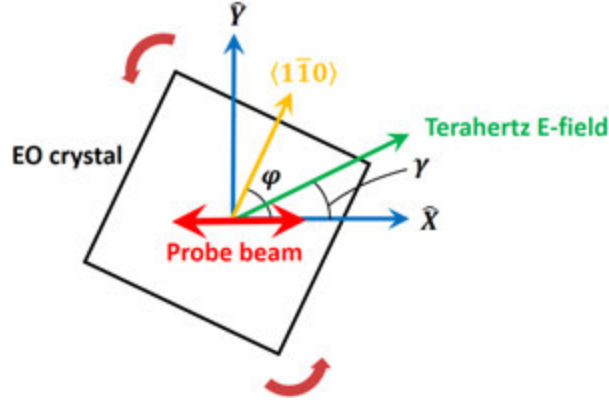


図 2.6: EO 結晶の結晶軸  $[110]c$  (黄色)、テラヘルツ電場ベクトル (緑色)、プローブ光の電場ベクトル (赤色)、実験座標系の関係。角度  $\varphi$ 、 $\gamma$  の定義を示す。EO 結晶を回転させると角度  $\varphi$  だけが変化し、式 (18) で表現したバランス検出信号を変調することができる。

次に  $S(T)$  からテラヘルツ電場の振幅 ( $E_{\text{THz}}$ )、EO 結晶の初期角度 ( $\varphi_0$ ) とテラヘルツ波の偏光方向 ( $\gamma$ ) を得る手順を説明する。まず以下の  $\xi_i (i = 1 - 4)$  を求める。

$$\begin{aligned}\xi_1 &\propto \frac{\omega_{\text{EO}}}{\pi} \int_0^{2\pi} \omega_{\text{EO}} S(T) \cos(\omega_{\text{EO}} T) dT \\ \xi_2 &\propto \frac{\omega_{\text{EO}}}{\pi} \int_0^{2\pi} \omega_{\text{EO}} S(T) \sin(\omega_{\text{EO}} T) dT \\ \xi_3 &\propto \frac{\omega_{\text{EO}}}{\pi} \int_0^{2\pi} \omega_{\text{EO}} S(T) \cos(3\omega_{\text{EO}} T) dT \\ \xi_4 &\propto \frac{\omega_{\text{EO}}}{\pi} \int_0^{2\pi} \omega_{\text{EO}} S(T) \sin(3\omega_{\text{EO}} T) dT\end{aligned}\quad (20)$$

計算を進めると  $\xi_i$  は以下ようになる。

$$\begin{aligned}\xi_1 &\propto E_{\text{THz}} \cos(\gamma + \varphi_0) \\ \xi_2 &\propto -E_{\text{THz}} \sin(\gamma + \varphi_0) \\ \xi_3 &\propto E_{\text{THz}} \cos(\gamma - 3\varphi_0) \\ \xi_4 &\propto E_{\text{THz}} \sin(\gamma - 3\varphi_0)\end{aligned}\quad (21)$$

式 (21) の連立方程式を解くと  $E_{\text{THz}}$ 、 $\gamma$ 、 $\varphi_0$  の 3 つを求めることができる。このように回転電気光学結晶法では EO 結晶の結晶軸の向きとプローブ光の偏光方向のなす角度 ( $\varphi$ ) を正確に調整することなく簡便にテラヘルツ電場の振幅と偏光方向を同時に求めることができる。

#### 2.4.4 偏光状態を表すパラメーター

前節まではジョーンズ行列を用いて偏光状態を記述した。ジョーンズ行列は偏光状態を数式で記述する為、測定系を設計する上では非常に役に立つ。しかし偏光応答が未知のサンプルを解析する上では使いづらい。そこで本論文の偏光実験 (第 3~5 章) では実験結果の解釈に楕円率角と旋光角、ストー

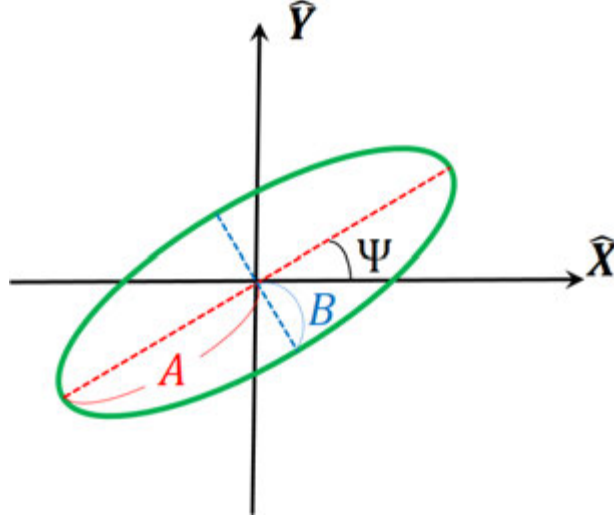


図 2.7: 楕円偏光電場の軌跡を表す 2 つの偏光パラメーター。楕円率角  $\theta$  は長軸方向の電場振幅 ( $A$ ) と短軸方向の電場振幅 ( $B$ ) の比を表す為に使用する補助角度であり、 $\tan \theta \equiv B/A$  を満たす。旋光角  $\Psi$  は基準軸 ( $\hat{X}$ ) と楕円偏光長軸のなす角度を表す。これらの 2 つの偏光パラメーターを用いることで、偏光状態を一意に表現することができる。

クスパラメーターというパラメーターを使用した。本節ではそれらのパラメーターについて説明を行う。なお、偏光状態を数式で記述する方法は多数あるが、ここでは、代表的な記述の一部のみを取り扱う。より詳細な記述に関しては文献 [39–42] などを確認して頂きたい。

楕円偏光電場の軌跡を図 2.7 に示す。楕円偏光の軌跡は 2 つのパラメーター：長軸方向の電場振幅 ( $A$ ) と短軸方向の電場 ( $B$ ) の比、基準軸 ( $\hat{X}$ ) と長軸のなす角度 ( $\Psi$ ) を用いて一意に表現することができる。楕円率角  $\theta$  を  $\tan \theta \equiv B/A$  と定義し、旋光角を角度  $\Psi$  と定義する。楕円率角  $\theta$  と旋光角  $\Psi$  を用いれば楕円偏光の軌跡を一意に表現することができる。定義から分かるように楕円率角  $\theta$  が 0 の時は直線偏光に、楕円率角  $\theta$  が  $\pm\pi/4$  の時は円偏光になる。楕円偏光の場合は  $0 < |\theta| < \pi/4$  である。楕円率角  $\theta$  の符号によって楕円偏光の回転の向き (右回りか左回りか) が決まる。

次に楕円率角  $\theta$  と旋光角  $\Psi$  とジョーンズベクトルの関係を示す。まず式 (5) のジョーンズベクトルから以下のパラメーター  $\chi$  を求める。

$$\chi \equiv \frac{E_{1Y} \exp(i\phi_Y)}{E_{1X} \exp(i\phi_X)} = \frac{E_{1Y}}{E_{1X}} \exp(i\delta) \quad (22)$$

ここで  $\delta \equiv \phi_Y - \phi_X$  である。パラメーター  $\chi$  を用いて楕円率角  $\theta$  と旋光角  $\Psi$  は以下のように記述できる [43]。

$$\begin{aligned} \sin(2\theta) &= \frac{2\text{Im}[\chi]}{1 + |\chi|^2} \\ \tan(2\Psi) &= \frac{2\text{Re}[\chi]}{1 - |\chi|^2} \end{aligned} \quad (23)$$

ここで楕円率角  $\theta$  の符号について、少々説明を加えておく。教科書 [43] では、楕円率角  $\theta$  を記述する式にマイナスの符号が付いている。しかし、その後、出版された日本語に翻訳された版では、マイナスの符号は誤りであり修正した、という記述がある。そこで、本論文ではマイナスの符号を取り除いた方の式を使用する。ただし、これは定義上の問題であり、本質的にはどちらでも問題ない。

それでは、次にストークスパラメーター ( $s_1, s_2, s_3$ ) の説明を行う。楕円率角  $\theta$  と旋光角  $\Psi$  を用いて

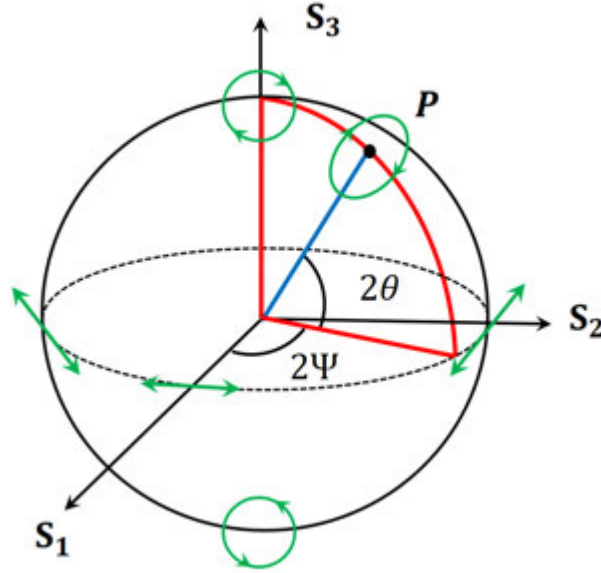


図 2.8: ストークスパラメーター ( $s_1, s_2, s_3$ ) を  $s_1, s_2, s_3$  を軸とした半径 1 の球面上にプロットした図。この球をポアンカレ球という。

ストークスパラメーターは以下のように記述される [44]。

$$s_1 = \cos(2\theta) \cos(2\Psi) \quad (24)$$

$$s_2 = \cos(2\theta) \sin(2\Psi) \quad (25)$$

$$s_3 = \sin(2\theta) \quad (26)$$

ストークスパラメーターの特徴は  $s_1^2 + s_2^2 + s_3^2 = 1$  を満たす為、全ての偏光状態を  $s_1, s_2, s_3$  を軸とした半径 1 の球面上にプロットすることができる点である。この球のことをポアンカレ球という。図 2.8 にポアンカレ球を示す。直線偏光は  $s_1^2 + s_2^2 = 1, s_3 = 0$  を満たす為、ポアンカレ球上では赤道に表示される。また円偏光は  $s_3 = \pm 1$  を満たす為、ポアンカレ球上では北極、または南極上に表示される。楕円偏光は赤道、北極、南極以外の点にプロットされる。式 (24)~(26) より楕円率角  $\theta$ 、旋光角  $\Psi$  の偏光状態はポアンカレ球上で北緯 (南緯)  $2|\theta|$ 、経度  $2\Psi$  の点にプロットできる。

またポアンカレ球は任意の複屈折板を透過する前後の偏光状態を図示することができる [41]。例として式 (11) で示したジョーンズ行列  $Z(\alpha)$  で示される複屈折板を透過する前後の偏光状態を説明する。図 2.9 では、複屈折板として『遅軸が X 軸から  $-45^\circ$  傾いた QWP』を考える。つまり  $\alpha = -\pi/4$ 、 $C = \pi/2$  の場合である。

複屈折板透過前を X 方向に偏波した直線偏光とする。この偏光状態は図 2.9 に示したポアンカレ球上の  $P_1$  にプロットされる。QWP 透過後、偏光状態は円偏光となり、透過後の偏光状態は点  $P_3(0, 0, 1)$  にプロットされる。QWP 透過による偏光状態の変化は、点  $P_1$  から点  $P_3$  への移動に対応する。この移動は、点  $P_1$  から角度  $2\alpha$  だけ赤道を回転した点  $P_2$  を中心に、角度  $2C$  だけ回転した事と表現できる。このように複屈折板による偏光状態の変化はポアンカレ球上での回転によって考えることができ、回転中心となる点は角度  $\alpha$  によって決まり、回転角は複屈折の位相差  $C$  によって決まる。以上は簡単な QWP の場合について説明したが、ポアンカレ球は偏光応答が未知のサンプルを調べる上でも役に立つ。第 3 章の実験検証ではポアンカレ球を用いて測定結果を解釈する。

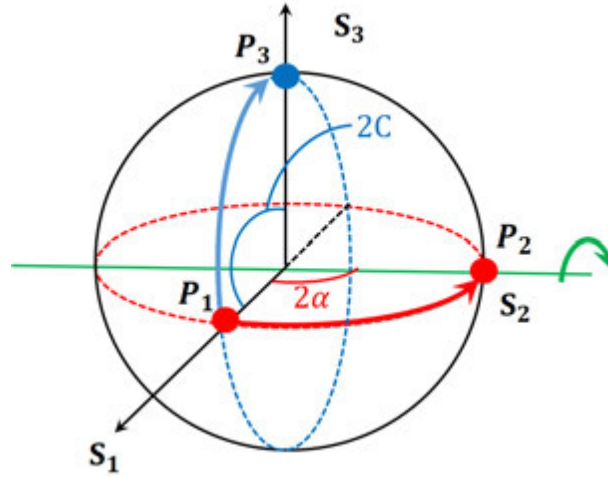


図 2.9: ポアンカレ球上では点  $P_1$  にいる直線偏光が QWP を透過してポアンカレ球上では点  $P_3$  にいる円偏光になったことを示す図。点  $P_1$  から点  $P_3$  への移動は直線  $P_2O$  回りの回転によって表現することができる。点  $P_2$  の位置は複屈折板 (QWP) の遅軸の向き (角度  $\alpha$ ) によって決まり、直線  $P_2O$  回りの回転角度は遅軸と速軸の位相差  $C$  によって決まる。

## 2.5 先行研究に於ける波形歪み効果の取り扱い方

式 (18) に示したようなバランス検出信号  $S$  を、そのまま使用できるのは EO 結晶内部で位相不整合や吸収が全くないような理想的な場合のみであり、これは実際の測定条件とは大きく乖離している。その為、位相不整合下で測定されたテラヘルツ電場ベクトル波形を解釈できるような理論が必要になる。本節では位相不整合下で測定波形を解釈できるような理論を構築した先行研究について説明する。第 1 章で触れた通り、位相不整合下で測定された電場波形を解釈する描像として、ポッケルス効果に基づく複屈折描像とテラヘルツ電場と近赤外のプローブ光の間の和周波・差周波発生に基づく周波数混合描像の 2 つの描像がある。本節の前半では前者の描像について、後半では後者の描像について説明する。

### 2.5.1 複屈折描像に基づく解釈

本小節ではポッケルス効果に基づく複屈折描像を用いて、位相不整合下で測定された電場波形を解釈できる理論の先行研究について説明する。2.1 節で示した通り、複屈折描像よりも周波数混合描像の方がより正確に測定波形を解釈できる理論である。しかし、複屈折描像の方が単純で分かりやすく、特定の測定条件ではどちらの描像を用いても解釈結果が同じになる為、現在でも複屈折描像はよく用いられている。そこで本小節でも、複屈折描像に基づく解釈の先行研究について説明する。

複屈折描像を用いて、位相不整合下の測定波形を解釈するには EO 結晶のジョーンズ行列  $Z(\alpha)$  (式 (11)) を位相不整合下の場合に拡張する必要がある。大前提として先行研究らでは図 1.3(a) のような直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形を測定することを念頭に置いている。楕円偏光を測定する場合は WG 偏光子を用いて直線偏光に切り出してから測定する。直線偏光ではテラヘルツ電場ベクトルの向き (角度  $\gamma$ ) は位置  $Z$  に依らず常に一定であり、遅軸・速軸の向き (角度  $\alpha$ ) は一定になる。よって位相不整合下では EO 結晶に生じた複屈折の位相差  $C$  がどのように記述できるかが重要になる。ここで式 (14) に示した位相差  $C$  は、位相不整合がある場合、以下のように拡張することができる。

$$C = \frac{\omega_0}{c} \int_0^l \Delta n(Z) dZ \propto \int_0^l E_{\text{THz}}(Z) dZ \quad (27)$$

完全に位相整合が成立する場合の式である式 (14) と比べて、式 (27) では、位相不整合の効果によってプローブ光と時間的に重なる  $E_{\text{THz}}$  が伝搬方向に沿って変化し、その結果、 $\Delta n$  が伝搬方向に沿って変化していることを表している。式 (27) の第 2 式への変換では、式 (17) より  $\Delta n$  がテラヘルツ電場ベクトルの大きさ  $E_{\text{THz}}$  に比例する点を用いた。テラヘルツ波が直線偏光の場合、角度  $\alpha$ 、角度  $\gamma$  が常に一定の為、式 (18) よりバランス検出信号  $S$  は  $S \propto C$  であり、結果として以下ようになる。

$$S \propto C \propto \int_0^l E_{\text{THz}}(Z) dZ \quad (28)$$

式 (28) より、プローブ光と時間的に重なるテラヘルツ電場の大きさがどのように変化するか、を定式化することができればバランス検出信号  $S$  を定式化することができ、テラヘルツ電場の検出効率の周波数依存性などを考察することができるようになる。それでは、個々の先行研究について紹介する。以降ではテラヘルツ波の角周波数を  $\Omega$ 、EO 結晶内のテラヘルツ波の屈折率を  $n(\Omega)$ 、EO 結晶内のプローブ光パルスの群屈折率を  $n_g$  と定義する。本章で紹介する先行研究では全てテラヘルツ波とプローブ光は平行に EO 結晶内を  $+Z$  方向へと伝搬すると仮定している。また角周波数として小文字の  $\omega$  を使用した場合、その波は近赤外領域の光であるとする。

### コヒーレンス長の定義

1996 年、Nahata らは EO 検出法に使用する EO 結晶のコヒーレンス長  $l_c$  を定義した [27]。コヒーレンス長とは元々、和周波・差周波発生に於いて角周波数  $\omega_1, \omega_2$  の入射光から角周波数  $\omega_3 (= \omega_2 \pm \omega_1)$  の光を作る際に発生効率が最大になる非線形光学結晶の厚さ  $l_c$  として定義される。角周波数  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$  の波数をそれぞれ  $k_1^R(\omega_1), k_2^R(\omega_2), k_3^R(\omega_3)$  と定義し、 $\Delta k = k(\omega_3) - k(\omega_2) \mp k(\omega_1)$  とおく。この時、和周波・差周波発生のコヒーレンス長  $l_c$  は  $l_c \equiv \pi / \Delta k$  と定義できる。EO 検出に於いてもテラヘルツ電場の検出効率が最大になる EO 結晶の厚さを  $l_c$  と定義しており、以下のように定義される。

$$l_c \equiv \frac{\pi c}{\Omega |n_g - n(\Omega)|} \quad (29)$$

### 検出効率の周波数依存性

テラヘルツ波の屈折率  $n(\Omega)$  は角周波数  $\Omega$  に依存する為、テラヘルツ波の検出効率も角周波数  $\Omega$  に依存する。そこで 1997 年、Wu と Zhang は位相不整合によるテラヘルツ波の検出効率の周波数依存性を考察した [28]。まずプローブ光パルスはデルタ関数のように非常にパルス幅の短いパルスであり、テラヘルツ波は角周波数  $\Omega$  の単色波と仮定する。プローブ光と単色波のテラヘルツ波は EO 結晶内をそれぞれ  $c/n_g, c/n(\Omega)$  の速さで厚さ  $l$  の EO 結晶内を伝搬する。この時、EO 結晶の表面 ( $Z = 0$ ) でプローブ光と重なるテラヘルツ電場の位相を  $\phi(\Omega)$  とし、EO 結晶の裏面 ( $Z = l$ ) でプローブ光と重なるテラヘルツ電場の位相を  $\Omega\delta(t) + \phi(\Omega)$  とする。すると  $\delta(t)$  は以下のように記述することができる。

$$\Omega\delta(t) \equiv \Omega \cdot \frac{(n_g - n(\Omega))d}{c} \quad (30)$$

EO 信号は時間  $\delta(t)$  の間のテラヘルツ電場の大きさの平均で記述できると考え、以下のように EO 信号  $S$  を記述した。

$$S \propto \frac{1}{\delta(t)} \int_0^{\delta(t)} \exp(i\Omega t + i\phi(\Omega)) dt \propto \frac{\exp(i\Omega\delta(t)) - 1}{i\Omega\delta(t)} \quad (31)$$

実際の検出効率は式 (31) の絶対値である  $\text{sinc} \left( \frac{(n_g - n(\Omega))d/2c}{(n_g - n(\Omega))/2c} \right)$  にフレネル反射によるテラヘルツ波の損失  $t(\Omega) = 2/[(n(\Omega) + 1)]$  を掛けたものになる。



### プローブパルスのパルス幅

1998 年に Bakker らはプローブ光として用いる超短パルスレーザー光のパルス幅を考慮できるモデルを提案し、有限のパルス幅を持つプローブ光パルスを使用した時の EO 信号  $S$  は以下のような 2 重積分で表現できるのではないかと主張した [26]。

$$S(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_0^l dZ I_{\text{opt}}(Z, t - \tau) \cdot E(Z, t) \quad (32)$$

ここで  $\tau$  は遅延ステージによる遅延時間、 $I_{\text{opt}}(Z, t - \tau)$  は以下のように定義されるガウシアン型のプローブ光パルスである。

$$I_{\text{opt}}(Z, t - \tau) = I_0 \exp \left[ - \left( \frac{t - \tau - Z/v_g}{\tau_p} \right)^2 \right] \quad (33)$$

$v_g$  はプローブ光パルスの群速度、 $I_0$  は強度を表す。時間  $\tau$  は遅延ステージによってできる遅延時間を表す。先ほどの Wu と Zhang の研究 [28] はプローブ光のパルス形をデルタ関数、テラヘルツ電場を単色波と近似していたので式 (32) に  $I_{\text{opt}} \propto \delta(t - \tau - Z/v_g)$ 、 $E(Z, t) \propto \exp(i\Omega t - ik(\Omega)Z)$  を代入すれば先ほどの式 (31) を得ることができる。このように Bakker らが示した EO 信号 (式 (32)) は先行研究 [28] とよく整合性が取れており、位相不整合を考える上で直観的で分かりやすい。しかし式 (32) をどのように導出したのか、どのような場合に式 (32) が適応できるのか、など不明瞭な点が残っていた。

### 1998 年以降の研究

1999 年に Leitenstorfer らは非線形光学効果の効率を表す電気光学定数  $r_{41}$  の周波数依存性を考慮した [45]。今まで紹介した先行研究では電気光学定数  $r_{41}$  を定数と考えており、テラヘルツ電場の検出効率の周波数依存性を記述する上で  $r_{41}$  を無視していた。彼らはその周波数依存性をモデル化し、より正確な検出効率を見積もり、実験結果と比較した。更に 2004 年に Faure らは光整流法で発生するテラヘルツ電場のスペクトルを詳細に定式化した [30]。この時、プローブ光のパルス幅  $\tau_p$  の効果により、発生するテラヘルツ電場のスペクトルには  $\exp(-\frac{\Omega^2 \tau_p^2}{4})$  の補正がつくことを示した。その為、そのテラヘルツ電場を検出すれば、 $S$  にも上述のパルス幅の効果がつくことを示した。またテラヘルツ波は一般に放物面鏡などによって EO 結晶上に集光されるので、Faure らは集光による影響も見積もっている。

#### 2.5.2 周波数混合描像に基づく解釈

これまでに説明した複屈折描像を用いた先行研究では、ポッケルス効果によって生じた複屈折を、いかに現実に近い状況で記述するか、という事を目指していた。一方、1999 年に Gallot と Grischkowsky は EO 結晶内部で起こる非線形光学効果を EO 効果 (ポッケルス効果) で記述するのではなく、プローブ光とテラヘルツ波の間で和周波・差周波電場が発生すると考え、バランス検出信号を和周波・差周波電場を用いて記述した [29]。彼らの定義に従い、テラヘルツ電場を  $\mathbf{E}_1$ 、プローブ光の電場を  $\mathbf{E}_2$  とする。また EO 結晶内部で発生する  $\mathbf{E}_1$  と  $\mathbf{E}_2$  の和周波発生電場を  $\mathbf{E}_3$ 、差周波発生電場を  $\mathbf{E}_4$  とする。この時、EO 結晶透過後の近赤外光の  $\omega$  成分  $\mathbf{E}(\omega)$  は以下のように記述できる。

$$\mathbf{E}(\omega) = \mathbf{E}_2(\omega) + \mathbf{E}_3(\omega) + \mathbf{E}_4(\omega) \quad (34)$$

一般に  $\mathbf{E}_3(\omega)$ 、 $\mathbf{E}_4(\omega)$  の電場ベクトルの向きと位相は  $\mathbf{E}_2(\omega)$  とは異なる。つまり  $\mathbf{E}(\omega)$  は一般に楕円偏光となる。次に図 2.4 で示したバランス検出を行うことを考え、バランス検出信号  $S$  を定式化する。



この時、プローブ電場振幅の 2 乗  $|\mathbf{E}_2(\omega)|^2$  の項はバランス検出法では検出されない。また和周波・差周波発生電場の発生効率は非常に低く、電場強度が小さい ( $|\mathbf{E}_3(\omega)| + |\mathbf{E}_4(\omega)| \ll |\mathbf{E}_2(\omega)|$ )。その為、バランス検出信号は以下のように干渉項 (クロスターム) だけが検出されることができると考えることができる。

$$S \propto \mathbf{E}_2(\omega) \left( \mathbf{E}_3(\omega) + \mathbf{E}_4(\omega) \right) \quad (35)$$

ここで、角周波数  $\Omega$  のテラヘルツ電場の振幅を  $A(\Omega)$  とすると、 $\mathbf{E}_3(\omega)$  と  $\mathbf{E}_4(\omega)$  は  $A(\Omega)$  に比例する。Gallot と Grischkowsky はバランス検出信号  $S(\tau)$  は以下のように変形できることを示した。

$$S(\tau) \propto \text{Re} \int_{-\infty}^{\infty} f(\Omega) A(\Omega) \exp(-i\Omega\tau) d\Omega \quad (36)$$

ここで  $f(\Omega)$  は和周波・差周波発生 of 発生効率の周波数依存性を表わす。このモデルでは  $S(\tau)$  は各  $\Omega$  成分の和で表現されているので、測定された  $S(\tau)$  をフーリエ変換し、周波数分解することができる。その為、テラヘルツ分光の測定結果を解釈することができる。例えば、周波数応答  $h(\Omega)$  を持つ試料をテラヘルツ波の光路に設置しない時、設置した時の  $S$  をそれぞれ  $S_{\text{Ref}}$ 、 $S_{\text{Sample}}$  とすると、それらは以下のように記述できる。

$$S_{\text{Ref}}(\Omega) \propto f(\Omega) A(\Omega) \quad (37)$$

$$S_{\text{Sample}}(\Omega) \propto h(\Omega) f(\Omega) A(\Omega) \quad (38)$$

式 (37)、(38) から分かるように  $S_{\text{Ref}}(\Omega)$  と  $S_{\text{Sample}}(\Omega)$  の割り算から、試料の周波数応答 (透過スペクトル)  $h(\Omega)$  を測定できることが分かる。

Gallot と Grischkowsky 以前の複屈折描像に基づく先行研究では、テラヘルツ電場振幅  $E_{\text{THz}}$  が作る複屈折をモデル化していた。つまり時間領域で EO (バランス検出) 信号  $S$  を定式化していた。EO 結晶に入射されるテラヘルツ電場波形と実際に測定から得られるテラヘルツ電場波形の形が近い場合、測定された波形をフーリエ変換すればスペクトル情報を得ることができると考えていいだろう。しかし、位相不整合や吸収などが無視できないほど大きく、EO 結晶に入射するテラヘルツ電場波形と実際に測定から得られるテラヘルツ電場波形の形が大きく異なる場合、測定波形を単純にフーリエ変換することで、スペクトル情報やサンプルの透過スペクトル  $h(\Omega)$  を本当に測定できるのか、自明ではなかった。Gallot と Grischkowsky は周波数混合モデルに基づく理論構築の結果、EO 検出を利用した分光測定を行う上では、位相不整合や吸収の有無は問題にならないことを初めて明確に示した。

更に Gallot と Grischkowsky は周波数混合描像から得た  $S(\tau)$  を Bakker らが導入した二重積分の形に変形できることを示した。プローブ光の周波数領域の帯域  $\Delta\omega$  がプローブ光の中心周波数  $\omega_0$  に比べて十分に小さい時、 $S(\tau)$  は以下のように記述できる。

$$S(\tau) \propto \int_0^l dZ \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{opt}}(Z, t - \tau) P_{\text{EO}}(Z, t) dt \quad (39)$$

ここで  $P_{\text{EO}}(Z, t)$  は以下のように定義されるパルスである。

$$P_{\text{EO}}(Z, t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{\text{eff}}^{(2)}(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) \times A(\Omega) \exp(ik_1(\Omega)Z - i\Omega t + i\phi_1(\Omega)) d\Omega \quad (40)$$

式 (39) は Bakker らが示した 2 重積分の式に相当し、2 つの描像が等価になることを示した。

しかし、2006 年に Jamison らが指摘 [31] している通り Gallot と Grischkowsky の理論構築 [29] には多くの誤りがある。例えば、 $\Omega$  の周波数範囲を  $-\infty$  から  $+\infty$  に設定しているのにも関わらず、角周波数  $\Omega$  のテラヘルツ電場と角周波数  $\omega_2$  のプローブ光電場の間で和周波発生 ( $\omega_3 = \omega_2 + \Omega$ ) と差周波発生 ( $\omega_4 = \omega_2 - \Omega$ ) を別々に記述していることが挙げられる。 $\omega_3 = \omega_2 + \Omega$  の関係に於いて  $\omega_2 > 0$  かつ  $\Omega < 0$  の時、これは差周波発生に相当する。同様に  $\omega_4 = \omega_2 - \Omega$  の関係に於いて  $\omega_2 > 0$  かつ  $\Omega < 0$  の時、これは和周波発生に相当する。このように和周波・差周波発生電場を 2 重に足し合わせており、誤りである。その後出版された文献 [46] では Gallot と Grischkowsky の結果を引用するのに留めているものが多く、この誤りをどう考慮しているのかについては、明らかではない。

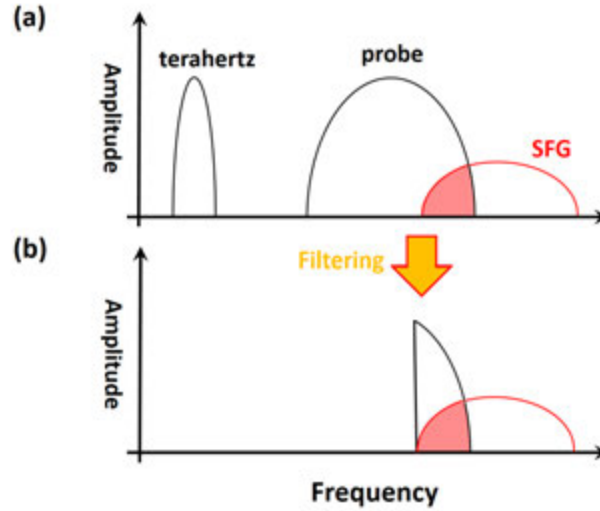


図 2.10: (a)EO 結晶内部で起こる和周波・差周波発生によって変化したプローブ光スペクトル形状のイメージ図。図中では和周波発生 (sum frequency generation: SFG) のみを図示している。薄い赤色の網掛け部分はプローブ光と和周波数発生 (SFG) で共通のスペクトル部分を示しており、この網掛け部分がバランス検出信号  $S$  に相当する [29]。 (b) ハイパスフィルタを用いて (a) のスペクトルを切り出した状態。網掛け部分のみバランス検出信号  $S$  に寄与する為、このようなフィルタリング操作を行っても測定される波形は不変である [47]。

## 2.6 周波数混合描像による測定結果解釈の必要性

前節では EO 検出によって測定される電場波形の解釈として、複屈折描像 (2.5.1 節参照) と周波数混合描像 (2.5.2 節参照) の 2 つの解釈方法があることを述べた。また本論文では繰り返し周波数混合描像の方がより正確に測定波形を解釈できると述べてきた。本節では、より正確に測定波形を解釈できる根拠として、周波数混合描像を用いないと解釈できない電場波形の測定結果や測定手法の具体例について説明する。

周波数混合描像ではプローブ光は EO 結晶内で周波数と偏光の両方に関して変調を受けると考える。一方、既存のポッケルス効果による複屈折描像ではプローブ光は EO 結晶内で偏光のみ変調を受け、周波数は不変であると考え。測定される電場の周波数がプローブ光の周波数に比べて非常に小さい時 (前節の数式で言う  $\Omega \ll \omega$  の時)、周波数混合描像における周波数変調は非常に小さいので無視することができる。よって 2 つの描像の内、どちらを用いて記述しても解釈結果は等価となる。問題となるのは測定される電場の周波数がプローブ光の周波数に近づいた時 ( $\Omega \approx \omega$  の時) である。この時、EO 結晶透過後、和周波・差周波発生によって、プローブ光のスペクトルは変化するということが実験的に分かっている [10, 47]。図 2.10(a) に和周波・差周波発生によって変化したプローブ光スペクトルの概念図を示す。

次に文献 [10, 47] で用いられている測定手法を周波数混合描像によって説明する。前節の議論によればバランス検出信号  $S$  はクロスターム  $\mathbf{E}_2(\omega)(\mathbf{E}_3(\omega) + \mathbf{E}_4(\omega))$  に比例する (式 (35) 参照)。ここでは差周波数発生は考慮せず  $\mathbf{E}_4$  は以後、除外する。図 2.10(a) では薄い赤色の網掛け部分がバランス検出信号に相当する。プローブ光と和周波数発生 (SFG) の周波数の共通部分 (網掛け部分) 以外はバランス検出信号に寄与しないので、例えば EO 結晶の後ろにハイパスフィルタを設置して図 2.10(b) のように高周波数成分だけを抜き出しても  $S$  は不変である。実験的には、このように余計なスペクトル成分を除去することでフォトディテクタの飽和を避け、フォトディテクタに入射させる事ができる電場強度を大きくすることができ、測定精度を大幅に上昇させることができる。実際に文献 [47] では、

ハイパスフィルタを設置することで S/N 比を数倍向上させている。なお、ローパスフィルタを用いると測定対象となるテラヘルツ電場波形のスペクトル成分がフォトディテクタに混じる可能性がある為 ( $\Omega \approx \omega$  の為)、ローパスフィルタよりもハイパスフィルタを用いた方が良い。

一方で上記の測定手法、及びその結果の S/N 比向上は複屈折描像では説明できない。複屈折描像では、プローブ光は偏光状態のみ変調を受けるので、EO 結晶透過前後でスペクトルの変化は見られないはずである。全ての  $\omega$  成分が、等しく偏光状態の変調を受け、等しくバランス検出信号  $S$  に寄与すると考える。その為、全ての周波数成分の代表として中心角周波数  $\omega_0$  の偏光状態の変化をジョーンズベクトル・ジョーンズ行列を用いて定式化し、EO(バランス検出) 信号を導出していた (式 (4)~(18) 参照)。

しかし、上記のように測定される電場の周波数がプローブ光の周波数に近づいた時、周波数 (スペクトル) 変調を無視する複屈折描像による考え方は誤りであり、測定方法・結果は周波数混合描像に基づいて考えなければいけない。このように複屈折描像よりも周波数混合描像による解釈の方が現実の測定結果をより正確に説明していると言う事ができる。

## 2.7 位相不整合下で測定された楕円偏光の解釈の必要性

第 2.5 節で示したように EO 検出法に於ける位相不整合の効果を論じた論文は多数あるが、全ての先行研究は直線偏光の電場ベクトル波形の検出を取り扱った研究である。楕円偏光の電場ベクトル波形を測定する場合、WG 偏光子を使用して直交する 2 つの直線偏光の電場成分を 2 回に分けて、例えば  $E_X$  と  $E_Y$  を測定すれば、直線偏光と同じ取り扱いができる。従って楕円偏光の位相不整合は考える必要がないと思われていた。

しかし、近年では測定可能な電場ベクトル波形の周波数帯域が WG 偏光子の周波数帯域を大きく超えてテラヘルツ周波数から近赤外領域へと広がっている [8,9]。また WG 偏光子を使用して楕円偏光の電場ベクトル波形を測定する場合、測定速度が偏光子の回転速度に、測定精度が偏光子の消光比で制限されてしまう。そこで WG 偏光子によって測定対象の電場ベクトルを変調するのではなく電気光学変調器 [20] や光弾性変調器 [19] を使用してプローブ光の偏光状態を変調して高速、高精度に楕円偏光の電場ベクトル波形を測定する手法が開発されている。これらの手法 [19,20] では楕円偏光の電場ベクトル波形が楕円偏光のまま EO 結晶に照射する。よって広帯域の周波数成分が含まれる楕円偏光の電場ベクトル波形を高速、高精度に測定したい場合は、楕円偏光の電場ベクトル波形が直接 EO 結晶に入射される場合を、つまり楕円偏光の位相不整合を考える必要がある。

テラヘルツ電場ベクトル波形が直線偏光と楕円偏光の場合の大きな違いは、プローブ光と時間的に重なる電場ベクトルの大きさだけでなく、向きも変わってしまうことである (図 1.7 参照)。EO 結晶に生じる複屈折の遅軸・速軸の向きは電場ベクトルの向きに依存する。よって位相不整合下で楕円偏光の電場ベクトル波形を測定しようとする、EO 結晶内部で複屈折の軸の向きと位相差の両方が伝搬方向に沿って同時に連続的に変化していくことになる。このように複屈折の軸の向きと位相差が伝搬方向に沿って連続的に変化するような複屈折の効果をジョーンズ行列を用いて表現することはできない。したがって、ポッケルス効果に基づく複屈折描像に変わって、位相不整合下で測定された楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形を解釈することができるモデルが必要となる。

また位相不整合を考察する際、屈折率などの物性パラメーターが周波数に依存する為、周波数分解して考察をする必要がある。直線偏光の場合、複屈折の軸の向きは常に一定である。よって電場の大きさに比例する複屈折の位相差を周波数分解することができた。一方、楕円偏光の場合、プローブ光と時間的に重なる電場ベクトルの向き  $\gamma(Z, t)$  が位置  $Z$  と時間  $t$  の関数になる。すると複屈折の遅軸の向き (角度  $\alpha(Z, t)$ ) も位置  $Z$  と時間  $t$  の関数になる。この時、バランス検出信号は位置  $Z$  と時間  $t$  にてパルス電場がどちらを向いているかで表現され、周波数分解することができない。

このように位相不整合下での楕円偏光の電場ベクトル波形測定を EO 効果による複屈折モデルで考察するには限界がある。そこで 3, 4, 5 章では Gallot と Grischkowsky が示した周波数混合描像を楕円

偏光の場合に拡張し、位相不整合下での楕円偏光の測定結果を解釈できるようにすることを目指す。

## 2.8 本章のまとめ

本章ではテラヘルツ波の電場波形の測定方法、テラヘルツ時間領域分光法 (Terahertz time-domain spectroscopy: THz-TDS) について説明した。また THz-TDS によって測定された電場ベクトル波形の偏光状態を記述・解釈するのに有用である楕円率角、旋光角やストークスパラメーター、そしてポアンカレ球についても説明を行った。

本章の後半では EO 結晶内部でのテラヘルツ波と近赤外のプローブ光パルスの位相不整合について論じた先行研究を紹介した。電場ベクトル波形の解釈を行う為には位相不整合の理解が必須である。したがって多くの研究者らが位相不整合下で測定された直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形を理解する為の研究を行ってきた。しかし、楕円偏光の電場ベクトル波形を直接測定する時の位相不整合については誰も論じてこなかった。そこで次の章からは位相不整合下での楕円偏光の測定結果を解釈する為の理論構築とその実験検証を行う。

## 第3章 電気光学結晶の対称性を用いたテラヘルツ偏光分光測定の定式化

### 3.1 本章の構成 (偏光分光の検証の必要性)

本章では位相不整合下で楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形を EO 検出で検出した際の理論構築を行い、その実験検証を行う。具体的には 31 ページで示した Gallot と Grischkowsky が示した周波数混合描像を楕円偏光の場合に拡張する。第 1 章で説明した通り、使用する EO 結晶を変えると測定される電場ベクトル波形は変わってしまう (図 1.6 参照)。これは EO 結晶を使用した電場ベクトル波形計測の問題点である。

本章では、こうした位相不整合下で正確に偏光分光測定が可能か検証する。まず、周波数混合描像に基づいて、位相不整合下での偏光分光測定の定式化を行う。定式化の結果、測定された電場ベクトル波形を単純に周波数分解すると、使用する EO 結晶に依らず偏光パラメーターを正確に測定できるということが分かった。本章の後半では、定式化の結論の実験検証を行う。3 種類の異なる EO 結晶を用意して、それぞれの EO 結晶を使用して、電場ベクトル波形を測定する。そして本当に使用する EO 結晶に依らず偏光パラメーターを正確に測定できるのか、検証する。検証の結果、定式化の結論通り、異なる EO 結晶を用いても同様の偏光パラメーターを正確に測定できることを示す。なお本章の内容は以下の論文に纏めてある。

K. Oguchi *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **12**, pp 3170-3180 (2014).

### 3.2 基礎方程式の導入

本節では非線形光学結晶内部で発生する和周波・差周波発生電場  $\mathbf{E}_3(Z, t)$ 、そして  $\mathbf{E}_3(Z, t)$  が作るバランス検出信号  $S(\tau)$  を導出するのに必要な基礎方程式の導入を行う。和周波・差周波発生電場の記述には非線形分極を含む Maxwell 方程式を使用する。本節で説明する内容は 1960 年代の非線形光学効果に関する論文 [48–50] とほぼ同じである。しかし、これらの基礎方程式は本節以降の本論文の全ての内容の背景となるので説明する。まず Maxwell 方程式を示す。

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (41)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (42)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (43)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mu_0 \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} \quad (44)$$

ここで  $\mathbf{D}$  は電束密度、 $\rho$  は電荷、 $\mathbf{B}$  は磁束密度、 $\mu_0$  は透磁率、 $\mathbf{H}$  は磁場、 $\mathbf{J}$  は電流密度である。本節では EO 結晶内部の伝搬を考えるので、 $\rho = 0$ 、 $\mathbf{J} = 0$  であるとする。また、非線形光学効果により和周波・差周波電場が発生する過程を定式化するので  $\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} + \mathbf{P}_{\text{NL}}$  とする。ここで  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  は非線形分極である。式 (41)~(44) を解くと以下の波動方程式を得る。

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \epsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{\text{NL}}}{\partial t^2} \quad (45)$$

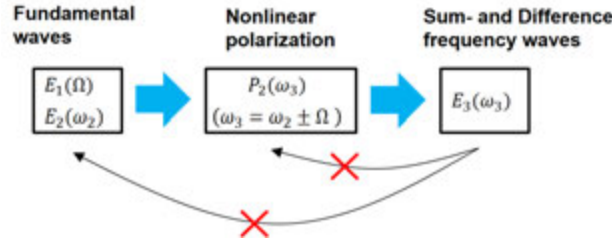


図 3.1: 式 (45) で表現される和周波・差周波数発生過程を示した図。青矢印とは逆向きに和周波・差周波数電場から非線形分極や角周波数  $\Omega$ 、 $\omega_2$  の 2 つの光が発生する過程は発生効率が非常に低い為、無視する (詳細は『付録 A』参照)。

式 (45) は和周波・差周波数発生を記述する方程式として有名な方程式であり、Boyd [51]、Shen [52] の非線形光学の教科書に出てくる式である。式 (45) は、図 3.1 に示すような角周波数  $\Omega$ 、 $\omega_2$  の基本波から角周波数  $\omega_3$  の非線形分極が形成され、非線形分極から和周波・差周波電場が発生する過程を表現している。理論的には、和周波・差周波数電場  $\mathbf{E}_3$  から非線形分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  や元々の基本波 ( $\mathbf{E}_1$  と  $\mathbf{E}_2$ ) が発生する過程も起こりうるが、一般的な EO 検出の計測条件ではその過程の発生効率は無視できるほど小さい為、無視する。なぜなら、非線形光学効果によって発生した角周波数  $\omega_3$  の電場強度は非常に小さく、更にそれを元にした非線形光学過程により発生した電場の強度はより一層、小さいからである。また同様に 3 次、4 次の高次の非線形光学効果についても、 $\mathbf{E}_1$  と  $\mathbf{E}_2$  の電場強度が小さい為、無視できる、そして、テラヘルツ電場や近赤外のプローブ光の第二高調波発生は位相整合が取れない為、無視できる、と仮定する。無視した電場の強度が、実際にどれ位オーダーが異なるのか、という定量的な見積もりは『付録 A』で行う。

それでは、式 (45) に戻る。ここでは、 $\mathbf{E}$  として  $Z$  方向に伝搬する平面波を考えるので  $\nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial Z^2}$  となる。また和周波・差周波数発生であることを明示する為に  $\mathbf{E}$  を  $\mathbf{E}_3$  とし、 $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  を  $\mathbf{P}_3$  とする。すると式 (45) は以下になる。

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_3}{\partial Z^2} = \varepsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}_3}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_3}{\partial t^2} \quad (46)$$

本章では式 (46) を基礎方程式として使用し、和周波・差周波発生電場、そしてバランス検出信号  $S(\tau)$  を導出する。

ここで微分演算子は線形な演算子なので  $\mathbf{E}_3$  は周波数ごとに分解することができる。同様に非線形分極  $\mathbf{P}_3$  が作る電場成分も周波数ごとに分解できる。そこで以降ではテラヘルツ電場の角周波数  $\Omega$  成分とプローブ光電場の角周波数  $\omega_2$  成分から角周波数  $\omega_3$  ( $\omega_3 = \Omega + \omega_2$ ) の非線形分極ができる過程のみを考える。この時、 $\mathbf{E}_3$  と非線形分極  $\mathbf{P}_3$  は時間によって  $\exp(-i\omega_3 t)$  と振動する為、 $\partial/\partial t = -i\omega_3$  とおけ、式 (46) は以下のように記述できる。

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_3}{\partial Z^2} = -\varepsilon \mu_0 \omega_3^2 \mathbf{E}_3 - \mu_0 \omega_3^2 \mathbf{P}_3 \quad (47)$$

ここで  $\mathbf{E}_3$ 、 $\mathbf{P}_3$  は角周波数  $\omega_3$  の関数であり、 $\mathbf{E}_3$ 、 $\mathbf{P}_3$  は一般に位置  $Z$  に依存するので以降では  $\mathbf{E}_3(Z, \omega_3)$ 、 $\mathbf{P}_3(Z, \omega_3)$  と表記する。

さて Gallot と Grischkowsky によって行われた定式化 [29] を、偏光情報も含めたベクトル波形計測に拡張する為、本論文では非線形分極  $\mathbf{P}_3(Z, \omega_3)$  の導出を以下に示すようなテンソル計算によって行う。

$$P_{3i}(Z, \omega_3) = 2\varepsilon_0 d_{ijk}(\omega_3; \omega_2, \Omega) E_{1j}(Z, \Omega) E_{2k}(Z, \omega_2) \quad (48)$$

ここで  $(i, j, k)$  は 3 次元空間の方向を表す。 $d_{ijk}(\omega_3; \omega_2, \Omega)$  は角周波数  $\Omega$  の電場  $\mathbf{E}_1(Z, \Omega)$  と角周波数  $\omega_2$  の電場  $\mathbf{E}_2(Z, \omega_2)$  から角周波数  $\omega_3$  の非線形分極  $\mathbf{P}_3(Z, \omega_3)$  が発生する時の非線形光学テンソルを表す。式 (48) はアインシュタインの規約を用いているのでこれを行列で表現すると以下ようになる。



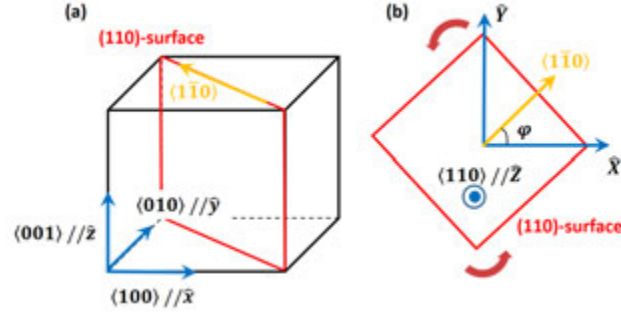


図 3.2: 結晶座標系 ( $\hat{x} \parallel [100]$ ,  $\hat{y} \parallel [010]$ ,  $\hat{z} \parallel [001]$ ) と実験座標系 ( $\hat{X}, \hat{Y}, \hat{Z}$ ) の関係。直線偏光のプロープ光の電場ベクトルの向きは  $\hat{X}$  であり、伝搬方向は  $\hat{Z}$  である。(a), (b) 共に (110) 面を赤い四角形で表現している。

$$\begin{pmatrix} P_{3x}(Z, \omega_3) \\ P_{3y}(Z, \omega_3) \\ P_{3z}(Z, \omega_3) \end{pmatrix} = 2\epsilon_0 \begin{pmatrix} d_{111} & d_{122} & d_{133} & d_{114} & d_{125} & d_{136} \\ d_{211} & d_{222} & d_{233} & d_{214} & d_{225} & d_{236} \\ d_{311} & d_{322} & d_{333} & d_{314} & d_{325} & d_{336} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} E_{1x}(Z, \Omega)E_{2x}(Z, \omega_2) \\ E_{1y}(Z, \Omega)E_{2y}(Z, \omega_2) \\ E_{1z}(Z, \Omega)E_{2z}(Z, \omega_2) \\ E_{1y}(Z, \Omega)E_{2z}(Z, \omega_2) + E_{1z}(Z, \Omega)E_{2y}(Z, \omega_2) \\ E_{1z}(Z, \Omega)E_{2x}(Z, \omega_2) + E_{1x}(Z, \Omega)E_{2z}(Z, \omega_2) \\ E_{1x}(Z, \Omega)E_{2y}(Z, \omega_2) + E_{1y}(Z, \Omega)E_{2x}(Z, \omega_2) \end{pmatrix} \quad (49)$$

$d_{ijk}$  は周波数の関数だが変数をつけると表現が煩雑になるので省略した。ここで  $x, y, z$  は非線形光学結晶の結晶軸に沿った座標系である ( $\hat{x} \parallel [100]$ ,  $\hat{y} \parallel [010]$ ,  $\hat{z} \parallel [001]$ )。結晶座標系 ( $\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}$ ) で式 (49) を解けば、18 個ある非線形光学テンソルの内、過半数以上の成分が 0 になり、また非 0 の成分の多くが同じ値になるので計算が楽になる。例えば本章で使用する点群  $\bar{4}3m$  の結晶では、 $d_{114} = d_{225} = d_{336}$  が成立し、それ以外のテンソル成分の値は 0 になる。これを行列で表すと以下ようになる。

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d \end{pmatrix} \quad (50)$$

本論文では結晶座標系 ( $\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}$ ) で非線形分極  $\mathbf{P}_3(Z, \omega_3)$  を計算し、実験座標系 ( $\hat{X}, \hat{Y}, \hat{Z}$ ) に戻し、和周波・差周波発生電場、バランス検出信号  $S(\tau)$  を計算する。次節ではバランス検出信号  $S(\tau)$  を計算する前に必要な変数の定義を行う。

### 3.3 楕円偏光電場波形の定義

楕円偏光テラヘルツ電場ベクトルを取り扱うに当たり、使用する変数の定義を示す。まず座標系の定義を行う。図 3.2 に座標系の定義を示す。まず非線形光学結晶の結晶軸に沿った座標系として ( $\hat{x} \parallel [100]$ ,  $\hat{y} \parallel [010]$ ,  $\hat{z} \parallel [001]$ ) を使用する。前節で説明した通り、この座標系は非線形分極を計算する時に使用する。本章では (110) 面で切り出された EO 結晶を使用する為、プロープ光やテラヘルツ波の電場ベクトルは EO 結晶の (110) 面内に存在する。これらの電場ベクトルを表現する為に、実験座標系 ( $\hat{X}, \hat{Y}, \hat{Z}$ ) を使用する。直線偏光のプロープ光の電場ベクトルの向きを  $\hat{X}$  とし、伝搬方向を  $\hat{Z}$  と

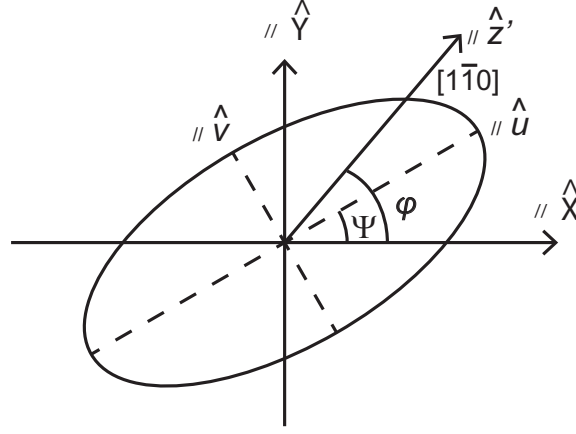


図 3.3: 楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形  $\mathbf{E}_1(Z, t)$  の角周波数  $\Omega$  成分の電場軌跡。Reprinted with permission from ref [53], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **31**, 3170-3180 (2014))

する。 $\hat{Y}$  は  $\hat{X}, \hat{Z}$  に垂直である。この時、実験座標系  $(\hat{X}, \hat{Y}, \hat{Z})$  と結晶座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  の関係は角度  $\varphi$  によって決まり、その時の 2 つの座標系の関係は以下のように記述できる。

$$\begin{aligned}\hat{X} &= \frac{1}{\sqrt{2}}\hat{x} \cos \varphi - \frac{1}{\sqrt{2}}\hat{y} \cos \varphi + \hat{z} \sin \varphi \\ \hat{Y} &= \frac{1}{\sqrt{2}}\hat{x} \sin \varphi - \frac{1}{\sqrt{2}}\hat{y} \sin \varphi - \hat{z} \cos \varphi \\ \hat{Z} &= \frac{1}{\sqrt{2}}\hat{x} + \frac{1}{\sqrt{2}}\hat{y}\end{aligned}\quad (51)$$

楕円偏光テラヘルツ電場を表現する為には座標系  $(\hat{u}(\Omega), \hat{v}(\Omega), \hat{w})$  を使用する。図 3.3 に示すように  $\hat{u}(\Omega)$  は楕円偏光の長軸の向きを、 $\hat{v}(\Omega)$  は短軸の向きを表す。 $\hat{u}(\Omega)$  と  $\hat{X}$  のなす角度を  $\Psi(\Omega)$  とすると、2 つの座標系の関係は以下になる。

$$\begin{aligned}\hat{u}(\Omega) &= \hat{X} \cdot \cos \Psi(\Omega) + \hat{Y} \cdot \sin \Psi(\Omega) \\ \hat{v}(\Omega) &= -\hat{X} \cdot \sin \Psi(\Omega) + \hat{Y} \cdot \cos \Psi(\Omega) \\ \hat{w} &= \hat{Z}\end{aligned}\quad (52)$$

ここで楕円偏光の形状はテラヘルツ波の周波数に依存する為  $\hat{u}(\Omega), \hat{v}(\Omega)$  は  $\Omega$  の関数となっている。伝搬方向  $\hat{w}$  は周波数に依存しない為、周波数の関数ではない。

楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形  $\mathbf{E}_1(Z, t)$  の定義を行う。 $\mathbf{E}_1(Z, t)$  の各周波数は一般に図 3.3 のような楕円偏光の電場軌跡をしている。よって  $\mathbf{E}_1(Z, t)$  は以下のように角周波数  $\Omega$  成分の単色光の足し合わせで表現できる。

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_1(Z, t) \equiv \int_0^{+\infty} & \left( A_1''(\Omega) \cos(k_1^R(\Omega)Z - \Omega t + \phi_1(\Omega)) \exp(-\beta_1(\Omega)Z) \cdot \hat{u}(\Omega) \right. \\ & \left. - B_1''(\Omega) \sin(k_1^R(\Omega)Z - \Omega t + \phi_1(\Omega)) \exp(-\beta_1(\Omega)Z) \cdot \hat{v}(\Omega) \right) d\Omega\end{aligned}\quad (53)$$

ここで  $A_1''(\Omega), B_1''(\Omega)$  はそれぞれ楕円偏光の長軸、短軸方向の電場振幅を表す。 $\phi_1(\Omega)$  は位置  $Z = 0$ 、時刻  $t = 0$  での電場の位相を表す。 $k_1^R$  は波数、 $\beta$  は吸収係数である。ここで電場波形を表現する際、 $\cos, \sin$  表記より  $\exp$  表記の方が計算が簡便になることが多い。そこで本章でも  $\exp$  表記を採用する。 $\exp$  表記の電場の解釈としては暗黙の内に実数部 (i.e.  $\text{Re}[\ ]$ ) を取る場合があるが、本章では以下のよ



うに負の周波数成分を導入し、物理量である電場が実数になるようにする。

$$\mathbf{E}_1(Z, t) \equiv \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \left( A_1''(\Omega) \exp(ik_1^R(\Omega)Z - i\Omega t + i\phi_1(\Omega)) \exp(-\beta_1(\Omega)Z) \cdot \hat{u}(\Omega) - iB_1''(\Omega) \exp(ik_1^R(\Omega)Z - i\Omega t + i\phi_1(\Omega)) \exp(-\beta_1(\Omega)Z) \cdot \hat{v}(\Omega) \right) d\Omega \quad (54)$$

式 (54) の  $+\Omega$  と  $-\Omega$  成分を足し合わせると式 (53) と等しくなる為には  $+\Omega$  と  $-\Omega$  成分の振幅、位相に以下のような関係が必要になる。

$$\begin{aligned} A_1''(\Omega) &= A_1''(-\Omega) & B_1''(\Omega) &= -B_1''(-\Omega) \\ k_1^R(\Omega) &= -k_1^R(-\Omega) & \beta_1(\Omega) &= \beta_1(-\Omega) \\ \phi_1(\Omega) &= -\phi_1(-\Omega) \end{aligned} \quad (55)$$

次に X 方向に偏波している直線偏光のプローブ光の電場波形  $\mathbf{E}_2(Z, t)$  を以下のように角周波数  $\omega_2$  の単色光の足し合わせで表現する。

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_2(Z, t) &\equiv \int_0^{+\infty} \left( A_2''(\omega_2) \cos(k_2^R(\omega_2)Z - \omega_2 t + \phi_2(\omega_2)) \exp(-\beta_2(\omega_2)Z) \cdot \hat{X} \right) d\omega_2 \\ &= \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \left( A_2''(\omega_2) \exp(ik_2^R(\omega_2)Z - i\omega_2 t + i\phi_2(\omega_2)) \exp(-\beta_2(\omega_2)Z) \cdot \hat{X} \right) d\omega_2 \end{aligned} \quad (56)$$

式 (56) の第 1 式と第 2 式が等しくなる為には  $+\omega_2$  成分と  $-\omega_2$  成分の間で以下の関係が満たされている必要がある。

$$\begin{aligned} A_2''(\omega_2) &= A_2''(-\omega_2) & k_2^R(\omega_2) &= -k_2^R(-\omega_2) \\ \beta_2(\omega_2) &= \beta_2(-\omega_2) & \phi_2(\omega_2) &= -\phi_2(-\omega_2) \end{aligned} \quad (57)$$

以降の計算では数式が煩雑になるのを避ける為、以下に示す省略形を適宜、使用する。

$$\begin{aligned} k_1(\Omega) &= k_1^R(\Omega) + \beta_1(\Omega) \\ k_2(\omega_2) &= k_2^R(\omega_2) + \beta_2(\omega_2) \\ A_1(Z, \Omega) &= A_1'(\Omega) \exp(ik_1(\Omega)Z) = \frac{1}{2} A_1''(\Omega) \exp(ik_1(\Omega)Z + i\phi_1(\Omega)) \\ B_1(Z, \Omega) &= B_1'(\Omega) \exp(ik_1(\Omega)Z) = \frac{1}{2} B_1''(\Omega) \exp(ik_1(\Omega)Z + i\phi_1(\Omega)) \\ A_2(Z, \omega_2) &= A_2'(\omega_2) \exp(ik_2(\omega_2)Z) = \frac{1}{2} A_2''(\omega_2) \exp(ik_2(\omega_2)Z + i\phi_2(\omega_2)) \end{aligned} \quad (58)$$

また式 (49) に示したように非線形分極  $\mathbf{P}_3(Z, \omega_3)$  の計算は結晶座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  で行う。その為、結晶座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  での  $\mathbf{E}_1(Z, t)$ 、 $\mathbf{E}_2(Z, t)$  を計算する必要がある。式 (51)、(52) に示した座標間の関係式を用いて式 (54) に示した  $\mathbf{E}_1(Z, t)$  を座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  で表現すると以下ようになる。

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_1(Z, t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ A_1(Z, \Omega) \cos(\Psi(\Omega) - \varphi) + iB_1(Z, \Omega) \sin(\Psi(\Omega) - \varphi) \right\} \hat{x} \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ -A_1(Z, \Omega) \cos(\Psi(\Omega) - \varphi) - iB_1(Z, \Omega) \sin(\Psi(\Omega) - \varphi) \right\} \hat{y} \right. \\ &\quad \left. + \left\{ -A_1(Z, \Omega) \sin(\Psi(\Omega) - \varphi) + iB_1(Z, \Omega) \cos(\Psi(\Omega) - \varphi) \right\} \hat{z} \right] \cdot \exp(-i\Omega t) d\Omega \\ &\equiv \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ E_{1x}(Z, \Omega) \hat{x} + E_{1y}(Z, \Omega) \hat{y} + E_{1z}(Z, \Omega) \hat{z} \right] \cdot \exp(-i\Omega t) d\Omega \end{aligned} \quad (59)$$

同様に (56) に示した  $\mathbf{E}_2(Z, t)$  に座標変換を施すと以下ようになる。

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_2(Z, t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ A_2(Z, \omega_2) \cos \varphi \right\} \hat{x} + \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ -A_2(Z, \omega_2) \cos \varphi \right\} \hat{y} \right. \\ &\quad \left. + \left\{ A_2(Z, \omega_2) \sin \varphi \right\} \hat{z} \right] \cdot \exp(-i\omega_2 t) d\omega_2 \\ &\equiv \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ E_{2x}(Z, \omega_2) \hat{x} + E_{2y}(Z, \omega_2) \hat{y} + E_{2z}(Z, \omega_2) \hat{z} \right] \cdot \exp(-i\omega_2 t) d\omega_2\end{aligned}\quad (60)$$

ここで  $E_{1i}(Z, \Omega)$ 、 $E_{2i}(Z, \omega_2)$  ( $i = x, y, \text{ or } z$ ) はそれぞれ式 (59)、(60) の [ ] の中の  $\hat{i}$  成分 ( $\hat{i} = \hat{x}, \hat{y}, \text{ or } \hat{z}$ ) の係数を表す。

最後に  $-\omega$  成分が常に  $+\omega$  と複素共役になり常に電場波形が実数になる為には、第2章で紹介した QWP のジョーンズ行列  $Q(\alpha)$  も以下のように記述しなければならない。

$$Q(\alpha) = R(-\alpha) \cdot \begin{pmatrix} \exp(-i \cdot \text{sign}(\omega_3) \frac{\pi}{4}) & 0 \\ 0 & \exp(+i \cdot \text{sign}(\omega_3) \frac{\pi}{4}) \end{pmatrix} \cdot R(\alpha) \quad (61)$$

ここで  $\text{sign}(\omega_3)$  は  $\omega_3 > 0$  の時は+1、 $\omega_3 < 0$  の時は-1である。

次節では本節で定義した電場を用いて、和周波・差周波発生による電場、そしてバランス検出信号を導出する。

### 3.4 バランス検出信号の導出

本節では THz-TDS 測定系でよく使用されている (110) 面が切り出された閃亜鉛結晶 (zinc-blende) 型の点群 43m 群に属する非線形光学結晶を用いた場合のバランス検出信号を導出する。

まず非線形分極の全ての周波数成分を足し合わせたもの  $\mathbf{P}_3(Z, t)$  を以下のように定義する。

$$\mathbf{P}_3(Z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ P_{3x}(Z, \omega_3) \hat{x} + P_{3y}(Z, \omega_3) \hat{y} + P_{3z}(Z, \omega_3) \hat{z} \right] \exp(-i\omega_3 t) d\omega_3 \quad (62)$$

閃亜鉛結晶 (zinc-blende) 型の結晶を使用する場合、式 (49) より  $P_{3i}$  ( $i = x, y, \text{ or } z$ ) は以下のように記述できる。

$$P_{3i}(Z, \omega_3) = 2\varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} d(\omega_3; \omega_2, \Omega) \left( E_{1j}(Z, \Omega) E_{2k}(Z, \omega_2) + E_{1j}(Z, \Omega) E_{2k}(Z, \omega_2) \right) d\Omega \quad (63)$$

ここで  $(i, j, k) = (x, y, z), (y, z, x), \text{ or } (z, x, y)$  である。次は結晶座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  で得られた  $\mathbf{P}_3(Z, t)$  を実験座標系  $(\hat{X}, \hat{Y}, \hat{Z})$  で表現する。式 (51) を用いて座標変換を行うと  $\mathbf{P}_3(Z, t)$  以下のように記述できる。

$$\mathbf{P}_3(Z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ P_{3X}(Z, \omega_3) \hat{X} + P_{3Y}(Z, \omega_3) \hat{Y} \right] \exp(-i\omega_3 t) d\omega_3 \quad (64)$$

ここで式 (64) 中の  $P_{3I}$  [ $I = X \text{ or } Y$ ] は以下のように記述できる。

$$P_{3I}(Z, \omega_3) = \int_{-\infty}^{+\infty} P'_{3I}(\Omega, \omega_3 - \Omega) \exp[i(k_1(\Omega) + k_2(\omega_3 - \Omega))Z] d\Omega \quad (65)$$

更にここで式 (65) 中の  $P'_{3I}(\Omega, \omega_3 - \Omega)$  [ $I = X \text{ or } Y$ ] は以下のように記述できる。

$$\begin{aligned}P'_{3X}(\Omega, \omega_3 - \Omega) &= 2\varepsilon_0 d(\omega_3, \Omega, \omega_3 - \Omega) A'_2(\omega_3 - \Omega) \\ &\quad \times \left[ A'_1(\Omega) \left\{ \frac{3}{4} \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi) - \frac{1}{4} \sin(\Psi(\Omega) + \varphi) + \frac{1}{2} \sin(\Psi(\Omega) - \varphi) \right\} \right. \\ &\quad \left. + iB'_1(\Omega) \left\{ -\frac{3}{4} \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{4} \cos(\Psi(\Omega) + \varphi) - \frac{1}{2} \cos(\Psi(\Omega) - \varphi) \right\} \right]\end{aligned}\quad (66)$$

$$\begin{aligned}
P'_{3Y}(\Omega, \omega_3 - \Omega) &= 2\varepsilon_0 d(\omega_3, \Omega, \omega_3 - \Omega) A'_2(\omega_3 - \Omega) \\
&\left[ A'_1(\Omega) \left\{ \frac{3}{4} \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{4} \cos(\Psi(\Omega) + \varphi) \right\} + i B'_1(\Omega) \left\{ \frac{3}{4} \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{4} \sin(\Psi(\Omega) + \varphi) \right\} \right]
\end{aligned} \quad (67)$$

実験座標系  $(\hat{X}, \hat{Y}, \hat{Z})$  で表現された  $\mathbf{P}_3(Z, t)$  (式 (64)) を用いて、和周波・差周波発生電場を計算する前に和周波・差周波発生電場  $\mathbf{E}_3(Z, t)$  を以下のように定義する。

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_3(Z, t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ E_{3X}(Z, \omega_3) \cdot \hat{X} + E_{3Y}(Z, \omega_3) \cdot \hat{Y} \right] \cdot \exp(-i\omega_3 t) d\omega_3 \\
&= \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ E'_{3X}(\omega_3) \cdot \hat{X} + E'_{3Y}(\omega_3) \cdot \hat{Y} \right] \cdot \exp\left(ik_3(\omega_3)Z - i\omega_3 t\right) d\omega_3 \\
&= \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ \frac{1}{2} E''_{3X}(\omega_3) \cdot \hat{X} + \frac{1}{2} E''_{3Y}(\omega_3) \cdot \hat{Y} \right] \cdot \exp\left(ik_3(\omega_3)Z - i\omega_3 t + i\phi_3(\omega_3)\right) d\omega_3
\end{aligned} \quad (68)$$

ここで  $k_3(\omega_3) \equiv k_3^R(\omega_3) + i\beta_3(\omega_3)$ 、 $\phi_3(\omega_3)$  はそれぞれ複素波数、位相である。また式 (68) より  $E_{3I}(Z, \omega_3) = E'_{3I}(\omega_3) \exp(ik_3(\omega_3)Z)$ 、及び  $E'_{3I}(\omega_3) = \frac{1}{2} E''_{3I}(\omega_3) \exp(i\phi_3(\omega_3))$  [ $I = X$  or  $Y$ ] が成立する。

式 (63) を式 (47) に代入し、 $Z = 0$  から  $Z = l$  まで積分して  $Z = l$  での電場  $E_{3I}(Z = l, \omega_3)$  [ $I = X$  or  $Y$ ] を求めると以下ようになる。

$$E_{3I}(l, \omega_3) = i \frac{\omega_3^2}{2\varepsilon_0 c^2 k_3^R(\omega_3)} \cdot \exp(ik_3(\omega_3)l) \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(i\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)l) - 1}{i\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)} \cdot P'_{3I}(\Omega, \omega_3 - \Omega) d\Omega \quad (69)$$

ここで式 (69) に含まれる  $\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)$  は以下のように定義され、位相不整合の大きさを表す。

$$\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3) \equiv k_1(\Omega) + k_2(\omega_3 - \Omega) - k_3(\omega_3) \quad (70)$$

こうして EO 結晶内部で発生する和周波・差周波発生電場を求めることができた。ここで Gallot と Grischkowsky らの先行研究 [29] との違いについて説明する。前章で示した通り Gallot と Grischkowsky らは和周波発生による電場を  $E_3$ 、差周波発生による電場を  $E_4$  としていた。一方、本研究では電場  $E_3$  の中に和周波・差周波発生電場の両方を含めた。 $E_{3I}(l, \omega_3)$  には  $[-\infty, \infty]$  の  $\Omega$  の積分が含まれており、 $\Omega < 0$  の時は差周波数発生に対応し  $\Omega > 0$  の時は和周波数発生に対応していると考えた為である。これにより和周波・差周波発生電場を 2 重にカウントする誤りを回避した。

次は EO 結晶透過後の和周波・差周波発生電場とプローブ光が作るバランス検出信号  $S$  を計算する。第 2 章で説明した通り、EO 検出では一般的に EO 結晶の後ろに QWP、WP、バランス検出器を設置し信号検出を行う (図 2.2 参照)。よって本節でも、第 2 章で示した先行研究の手順に従ってバランス検出信号を導出する。まず厚さ  $l$  の EO 結晶透過後の近赤外光の角周波数  $\omega_3$  成分のジョーンズベクトルは以下のように記述することができる。

$$\begin{pmatrix} E_{2X}(l, \omega_3) + E_{3X}(l, \omega_3) \\ E_{2Y}(l, \omega_3) + E_{3Y}(l, \omega_3) \end{pmatrix} \quad (71)$$

次に近赤外光は QWP を透過する。その後のジョーンズベクトルは式 (12) と同様に、以下のように記述することができる。

$$\begin{pmatrix} E_X(\omega_3) \\ E_Y(\omega_3) \end{pmatrix} = Q\left(\frac{\pi}{4}\right) \cdot \begin{pmatrix} E_{2X}(l, \omega_3) + E_{3X}(l, \omega_3) \\ E_{2Y}(l, \omega_3) + E_{3Y}(l, \omega_3) \end{pmatrix} \quad (72)$$

ただし電場波形が実数になるようにする為には、QWP のジョーンズ行列として式 (61) を用いる。式 (72) にて示した  $\begin{pmatrix} E_X \\ E_Y \end{pmatrix}$  を用いると、バランス検出信号  $S$  の  $\omega_3$  成分は  $|E_Y(\omega_3)|^2 - |E_X(\omega_3)|^2$  に比例する。計算を進めると、バランス検出信号  $S$  は以下のように記述できる。

$$\begin{aligned}
 S &= 2\varepsilon_0 c \int_0^{+\infty} \left[ \left\{ -i \cdot \text{sign}(\omega_3) \left( E_{2X}^*(l, \omega_3) + E_{3X}^*(l, \omega_3) \right) E_{3Y}(l, \omega_3) \right\} \right. \\
 &\quad \left. + \left\{ i \cdot \text{sign}(\omega_3) \left( E_{2X}(l, \omega_3) + E_{3X}(l, \omega_3) \right) E_{3Y}^*(l, \omega_3) \right\} \right] d\omega_3 \\
 &= 2\varepsilon_0 c \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ -i \cdot \text{sign}(\omega_3) \left( E_{2X}^*(l, \omega_3) + E_{3X}^*(l, \omega_3) \right) E_{3Y}(l, \omega_3) \right] d\omega_3 \\
 &\approx 2\varepsilon_0 c \int_{-\infty}^{+\infty} -i \cdot \text{sign}(\omega_3) E_{2X}^*(l, \omega_3) E_{3Y}(l, \omega_3) d\omega_3 \tag{73}
 \end{aligned}$$

ここで和周波・差周波発生電場の振幅はプローブ光の電場振幅に比べて十分に小さい為  $E_{3X}(l, \omega_3)$  と  $E_{3Y}(l, \omega_3)$  の積は 2 次の微小量として無視した。式 (73) に  $E_{2X}^*(l, \omega_3)$ 、 $E_{3Y}(l, \omega_3)$  を代入して、バランス検出信号  $S$  を計算すると以下ようになる。

$$\begin{aligned}
 S &= \int_{-\infty}^{+\infty} f(\Omega) \left[ A_1'(\Omega) \left\{ \frac{3}{2} \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{2} \cos(\Psi(\Omega) + \varphi) \right\} \right. \\
 &\quad \left. + i B_1'(\Omega) \left\{ \frac{3}{2} \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{2} \sin(\Psi(\Omega) + \varphi) \right\} \right] d\Omega \tag{74}
 \end{aligned}$$

ここでテラヘルツ電場の検出効率を表す変数を、以下のように  $f(\Omega)$  という関数として纏める [29]。

$$\begin{aligned}
 f(\Omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} A_2'^*(\omega_3) A_2'(\omega_3 - \Omega) \exp(-2\beta_3(\omega_3)l) \cdot d(\omega_3; \Omega, \omega_3 - \Omega) \\
 &\quad \times \frac{\varepsilon_0 \omega_3^2}{ck_3^R(|\omega_3|)} \frac{\exp(i\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)l) - 1}{i\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)} d\omega_3 \tag{75}
 \end{aligned}$$

$f(\Omega)$  は  $f(-\Omega) = f^*(\Omega)$  を満し、その為、バランス検出信号  $S$  は実数である。Gallot と Grischkowsky のバランス検出信号  $S$  には  $\text{Re}$  の記号が付いている (式 (36) 参照) が、Jamison らが指摘 [31] している通り誤りである。関数  $f(\Omega)$  には、プローブ光の振幅・位相、非線形光学定数  $d$ 、位相不整合の大きさを表す  $\Delta k$  など角周波数  $\Omega$  のテラヘルツ電場ベクトルの検出感度を定めるパラメーターが全て含まれている。つまり、 $f(\Omega)$  の値が分かればテラヘルツ電場の検出効率の周波数依存性が分かると言って良い。しかし、 $f(\Omega)$  に含まれる全てのパラメーターを正確に測定することは難しい。本節で最も大事なことはテラヘルツ波が楕円偏光の時も、測定に影響を与えるパラメーターを関数  $f(\Omega)$  として、とにかく 1 つに纏めることができることである。

さて THz-TDS 測定系では遅延ステージをプローブ光の光路中に導入しテラヘルツ波とプローブ光の相対遅延を変化させる。遅延ステージによる遅延時間を  $\tau$  とするとバランス検出信号は  $\tau$  の関数となり以下のように書ける。

$$\begin{aligned}
 S(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} f(\Omega) \left[ A_1'(\Omega) \left\{ \frac{3}{2} \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{2} \cos(\Psi(\Omega) + \varphi) \right\} \right. \\
 &\quad \left. + i B_1'(\Omega) \left\{ \frac{3}{2} \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{2} \sin(\Psi(\Omega) + \varphi) \right\} \right] \exp(-i\Omega\tau) d\Omega \tag{76}
 \end{aligned}$$

次節では EO 結晶内部で位相不整合や吸収がある場合に既存の偏光測定手法 [13, 18] を用いた場合、『楕円偏光の時間波形は正確に測定することはできないが、各周波数成分の偏光パラメーターである楕円率角と旋光角は正確に測定できる』ということを示す。

### 3.5 位相不整合の効果を考慮した電気光学結晶法による偏光測定

本節では EO 結晶内部で起こる位相不整合や吸収を考慮した場合、回転 EO 結晶法 [18] を用いて測定された電場ベクトルはどのように解釈されるのか、ということについて説明する。電場ベクトル波形を得る為の解析方法は、第 2 章で説明した先行研究の方法と同じである為、第 2 章の数式を引用しながら説明を進める。まず、EO 結晶を機械式の中空モーターに貼り付け回転させる。この時、EO 結晶の結晶軸の向きを表す角度  $\varphi$  は  $\varphi(T) = \omega_{\text{EO}}T + \varphi_0$  と記述することができる。この時、式 (76) で示した  $S(\tau)$  は  $T$  の関数となるので、以下では  $S(\tau)$  を  $S(\tau, T)$  と以下のように記述する。

$$S(\tau, T) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\Omega) \left[ A_1'(\Omega) \left\{ \frac{3}{2} \cos(\Psi(\Omega) - 3(\omega_{\text{EO}}T + \varphi_0)) + \frac{1}{2} \cos(\Psi(\Omega) + (\omega_{\text{EO}}T + \varphi_0)) \right\} \right. \\ \left. + iB_1'(\Omega) \left\{ \frac{3}{2} \sin(\Psi(\Omega) - 3(\omega_{\text{EO}}T + \varphi_0)) + \frac{1}{2} \sin(\Psi(\Omega) + (\omega_{\text{EO}}T + \varphi_0)) \right\} \right] \\ \exp(-i\Omega\tau) d\Omega \quad (77)$$

次は回転 EO 結晶法の解析方法に沿って式 (20) で示した通り、 $\xi_i (i = 1-4)$  を求める。 $S(\tau, T)$  が  $\tau$  の関数になった事に併せて  $\xi_i(\tau) (i = 1-4)$  とすると、 $\xi_i(\tau)$  は以下のように記述できる。

$$\xi_1(\tau) \equiv \frac{\omega_{\text{EO}}}{\pi^2} \int_0^{2\pi} \omega_{\text{EO}} S(\tau, T) \cos(\omega_{\text{EO}}T) dT \quad (78)$$

$$\xi_2(\tau) \equiv \frac{\omega_{\text{EO}}}{\pi^2} \int_0^{2\pi} \omega_{\text{EO}} S(\tau, T) \sin(\omega_{\text{EO}}T) dT \quad (79)$$

$$\xi_3(\tau) \equiv \frac{\omega_{\text{EO}}}{3\pi^2} \int_0^{2\pi} \omega_{\text{EO}} S(\tau, T) \cos(3\omega_{\text{EO}}T) dT \quad (80)$$

$$\xi_4(\tau) \equiv \frac{\omega_{\text{EO}}}{3\pi^2} \int_0^{2\pi} \omega_{\text{EO}} S(\tau, T) \sin(3\omega_{\text{EO}}T) dT \quad (81)$$

ここで  $\xi_i(\tau)$  のフーリエ成分である  $\xi_i(\Omega)$  をフーリエ変換を用いて以下のように得る。

$$\tilde{\xi}_i(\Omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \xi_i(\tau) \exp(+i\Omega\tau) d\tau \quad (82)$$

式 (76)-(81) を用いる事で、以下の  $\xi_i(\Omega)$  を得る。

$$\tilde{\xi}_1(\Omega) = f(\Omega) \left[ A_1'(\Omega) \cos(\Psi(\Omega) + \varphi_0) + iB_1'(\Omega) \sin(\Psi(\Omega) + \varphi_0) \right], \quad (83)$$

$$\tilde{\xi}_2(\Omega) = f(\Omega) \left[ -A_1'(\Omega) \sin(\Psi(\Omega) + \varphi_0) + iB_1'(\Omega) \cos(\Psi(\Omega) + \varphi_0) \right], \quad (84)$$

$$\tilde{\xi}_3(\Omega) = f(\Omega) \left[ A_1'(\Omega) \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi_0) + iB_1'(\Omega) \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi_0) \right], \quad (85)$$

$$\tilde{\xi}_4(\Omega) = f(\Omega) \left[ A_1'(\Omega) \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi_0) - iB_1'(\Omega) \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi_0) \right]. \quad (86)$$

式 (83)~(86) に示した  $\xi_i(\Omega)$  は式 (21) と同様に  $\xi_1(\tau)$  は  $\hat{X}$  から  $\varphi_0$  だけ傾いた軸の電場成分を、 $-\xi_2(\tau)$  は  $\hat{Y}$  から  $\varphi_0$  だけ傾いた軸の電場成分を、 $\xi_3(\tau)$  は  $\hat{X}$  から  $-3\varphi_0$  だけ傾いた軸の電場成分を、 $\xi_4(\tau)$  は  $\hat{Y}$  から  $-3\varphi_0$  だけ傾いた軸の電場成分を表している。つまり  $\Omega$  成分の電場の X, Y 両成分を求めたい場合、以下のような操作を行えば良い。

$$\begin{pmatrix} f(\Omega)E_{1X}(\Omega) \\ f(\Omega)E_{1Y}(\Omega) \end{pmatrix} = R(-\varphi_0) \cdot \begin{pmatrix} \tilde{\xi}_1(\Omega) \\ -\tilde{\xi}_2(\Omega) \end{pmatrix} = R(3\varphi_0) \cdot \begin{pmatrix} \tilde{\xi}_3(\Omega) \\ \tilde{\xi}_4(\Omega) \end{pmatrix} \quad (87)$$

角度  $\varphi_0$  は未知数であるが式 (87) の 2 つの式を同時に満たさなくてはならないので、そこから角度  $\varphi_0$  を決定することができ、最終的に  $\begin{pmatrix} f(\Omega)E_{1X}(\Omega) \\ f(\Omega)E_{1Y}(\Omega) \end{pmatrix}$  を求めることができる。

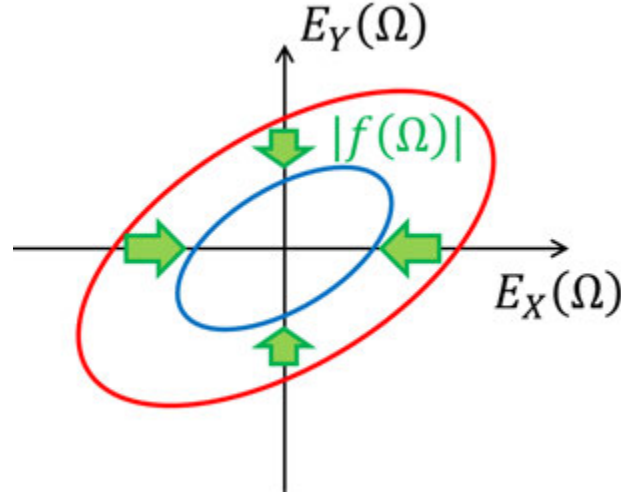


図 3.4: 位相不整合下で測定される角周波数  $\Omega$  成分の電場軌跡。赤い楕円の軌跡は実際に空气中を伝搬している電場ベクトル波形を周波数分解して得られる角周波数  $\Omega$  成分の電場軌跡で、青い楕円は測定された楕円偏光の電場ベクトル波形を周波数分解して得られる電場軌跡である。2つの電場軌跡は相似形であり、その振幅比は  $|f(\Omega)|$  である（図中の緑色の矢印）

### 3.6 本章の理論構築の結論

本節では、本章の理論構築の結論について説明する。まず現実的に空气中を伝搬するテラヘルツ電場波形の角周波数  $\Omega$  成分の電場は  $\begin{pmatrix} E_{1X}(\Omega) \\ E_{1Y}(\Omega) \end{pmatrix}$  である。一方、実験から測定できる電場には空气中を伝搬するテラヘルツ電場の  $\Omega$  成分に対して関数  $f(\Omega)$  が乗算されている。前述した通り関数  $f(\Omega)$  はテラヘルツ電場の検出効率を表す関数であり、使用する EO 結晶やプローブ光パルスに依存する。つまり使用する EO 結晶やプローブ光パルスの形状が変わると関数  $f(\Omega)$  の値も変化する。図 3.4 に位相不整合下で測定される角周波数  $\Omega$  成分の電場軌跡と実際に空气中を伝搬する角周波数  $\Omega$  成分の電場軌跡の様子を示す。2つの楕円軌跡はこのような相似形になり関数  $f(\Omega)$  の絶対値がその縮尺率を表す。関数  $|f(\Omega)|$  はその縮尺率にしか影響を与えないので、たとえどんなに位相不整合や吸収が大きく検出効率が低い場合でも2つの電場軌跡は相似形になる。つまり実験的には楕円偏光の形状を表す偏光パラメーター（楕円率角  $\theta$ 、旋光角  $\Psi$ 、ストークスパラメーター）を測定する際、EO 結晶内部の位相不整合や吸収の効果やプローブ光のパルス幅は一切気にする必要がない。式 (22), (23) で示した通り楕円率角  $\theta$ 、旋光角  $\Psi$  を求めるにはパラメーター  $\chi$  のみが必要であり、以下のように求めることができる。

$$\frac{f(\Omega)E_{1Y}(\Omega)}{f(\Omega)E_{1X}(\Omega)} = \frac{E_{1Y}(\Omega)}{E_{1X}(\Omega)} = \chi(\Omega) \quad (88)$$

ここでパラメーター  $\chi$  は角周波数  $\Omega$  ごとに異なる値を持つので  $\Omega$  の関数とした。このように2つの測定値に共通因子  $f(\Omega)$  が乗算されていても、割り算によってキャンセルされる。つまりパラメーター  $\chi$  を求める上で位相不整合や吸収の効果はキャンセルされる、また位相不整合や吸収の有無に寄らず偏光パラメーターを測定できるということである。

本章の結論は位相不整合や吸収の大きさは EO 結晶の厚さや組成に依存するが、『どんな EO 結晶を使用しても正確に偏光パラメーターを測定できる』ということである。次節では、厚さや組成の異なる3種類の EO 結晶を用意し、 $f(\Omega)$  が変わった場合でも、本当にそれぞれの測定結果から同等の偏光パラメーター、楕円率角  $\theta$ 、旋光角  $\Psi$  が測定できるか検証を行う。



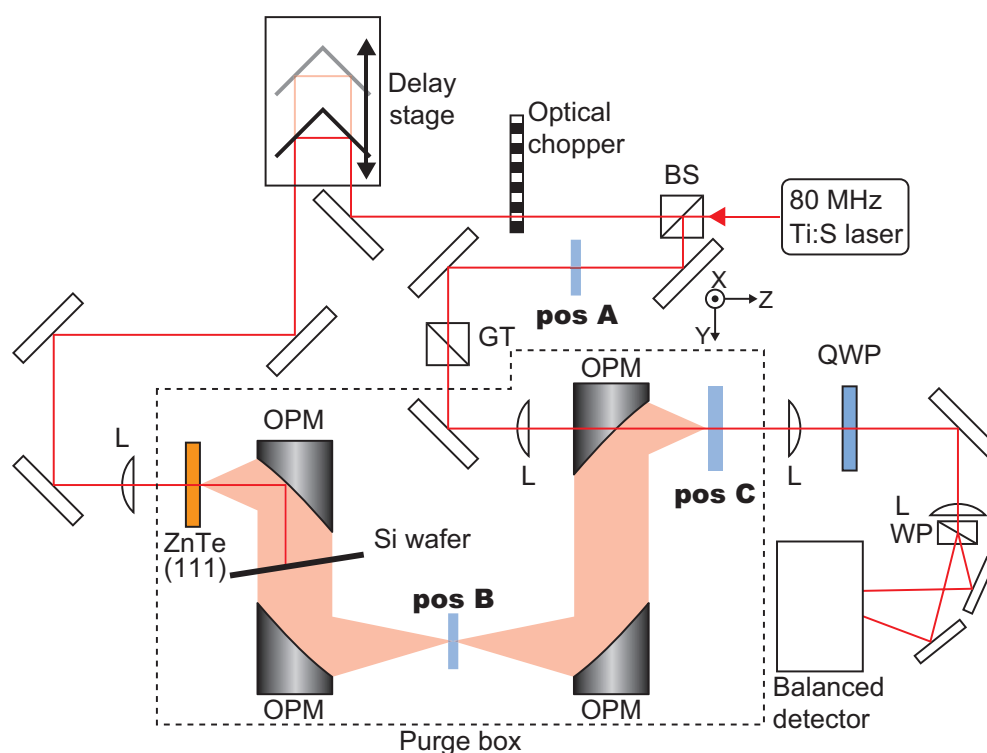


図 3.5: 実験検証で使用する測定系の概略図 [54]。楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形を作る為に pos B の位置に WG 偏光子、Tydex 社の石英複屈折板を設置している。pos C に (110) 面で切り出された 3 つの EO 結晶 (ZnTe 1 mm、ZnTe 2 mm、GaP 0.4 mm) の内、1 つを設置して電場ベクトル波形を計測する。1 つの測定が終了したら EO 結晶を入れ変えて同じ測定を 3 回行う。BS: a beam splitter, GT: a Glan-Thompson prism, OPM: an off-axis parabolic mirror, L: a lens, QWP: a quarter-wave plate, WP: a Wollaston prism. Reprinted with permission from ref [54], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **34**, 1946-1956 (2017))

## 3.7 実験検証

本節では『どんな閃亜鉛結晶型の EO 結晶を使用しても正確な偏光パラメータを測定できる』という前節の理論構築の結論の実験検証を行う。用意した 3 種類の EO 結晶は全て (110) 面で切り出された zinc-blende 型の EO 結晶 (ZnTe 1 mm、ZnTe 2 mm、GaP 0.4 mm) である。使用する測定系の概略を図 3.5 に示す。本測定系は一般的な THz-TDS 測定系とほぼ同様である。唯一の違いは回転 EO 結晶法によりテラヘルツ電場ベクトルを測定する為に EO 結晶を中空モーターに貼り付け、一定の回転速度で回転させていることである。また非線形光学結晶から放射されるテラヘルツ電場は直線偏光の為、Tydex 社の石英複屈折板を使用してテラヘルツ電場を楕円偏光にする。この複屈折板は 0.6 THz 近傍で 1/4 波長板として機能するように厚さが最適化されており、その他の周波数帯では一般に楕円偏光となる。

### 3.7.1 測定系の説明

本節では測定系に関して詳細な説明をする。光源は Spectra Physics 社の MaiTai を使用した。中心波長は 800 nm、パルス幅  $\tau_p$  は 90 fs、強度は 1 W である。この光源の光を Beam Splitter (BS) を使用してポンプ光とプローブ光に分離した。ポンプ光とプローブ光の強度比はおよそ 95:5 程度である。ポンプ光はより強いテラヘルツ波を発生させる為、出来るだけ強くする必要がある。一方、フォトダイ

オードに入射できる電場強度には限りがある為、プローブ光を強くする必要はない。その為、大部分の光をポンプ光として使用している。特にフォトダイオードに 2.3 mW 以上の光を入射させバランス検出を行うと、取り出す電圧信号が光強度に対して非線形な応答をする為、光強度は 2.3 mW 以下に設定しなければならない。プローブ光は BS 直後では 50 mW ほどの強度を持つがミラーで 1 度光を反射させると 5% ほどの損失があり、EO 結晶の屈折率が 3 ほどある為、その表面反射損失によって大きく強度が減衰する。強度減衰をできるだけなくす為には光学ミラーをエアブローで丁寧に掃除したり、ミラーの枚数を減らした光学系を組んだ。こうすると、より多くの光をポンプ光に使用し、より強いテラヘルツ電場を発生させ、より精度の高い測定が可能になった。

次にテラヘルツ波とプローブ光間の相対時間を変える為、遅延ステージをポンプ光の光路に設置する。遅延ステージを移動させると僅かに光路が変化する。ポンプ光によって発生したテラヘルツ波は波長が大きい為、回折で広がっており多少の光路の変化では測定に影響を与えない。一方で、プローブ光が最終的に入射するフォトディテクタは中心と縁で検出感度が異なる可能性があり、光路の変化は好ましくない。よって本測定系では遅延ステージをポンプ光の光路に設置した。ディレイステージを通過したポンプ光は厚さ 1 mm の ZnTe 結晶に入射されテラヘルツ波に周波数変換される。本測定系で発生させることができる周波数幅はおよそ 0.5~2.5 THz ほどである。発生したテラヘルツ波は 2 組の放物面鏡を用いて集光される。集光点には WG 偏光子と石英波板を設置して直線偏光のテラヘルツ電場を楕円偏光にする。使用した Tydex 社の石英複屈折板は 0.6 THz 単色用の QWP である。よって石英 QWP を透過した後、0.6 THz の電場は円偏光に、その他の周波数の電場は楕円偏光や直線偏光になることが予想される。そして、更にもう 2 組の放物面鏡を用意してテラヘルツ電場を EO 結晶上へと集光する。使用する EO 結晶は結晶ごとに厚さが異なる為、EO 結晶内部での集光状態が若干異なる可能性がある。そこで本測定では 3 つの結晶の中心位置を合わせた。ZnTe 1 mm を使用した時の EO 結晶の位置を基準として、ZnTe 2 mm を使用する際は結晶を 0.5 mm だけ後退させ、GaP 0.4 mm を使用する際は結晶を 0.3 mm だけ前進させた。放物面鏡の焦点距離は約 50mm と 100 mm の物を使用した。放物面鏡の焦点距離は特に注意を払っていないが、あまり焦点距離が長い放物面鏡を使用するとテラヘルツ波の光路長が長くなり、テラヘルツ波が空気中の水蒸気によって吸収されてしまう為、特別に焦点距離の長い物は使用しない方が良いと思われる。また空気中の水蒸気によるテラヘルツ波の吸収を抑える為 [55]、テラヘルツ波の光路はアクリル製の板で作成した箱で覆い、ゴム製チューブを使用して箱内部に乾燥空気を送り込み湿度を下げている。4 組の放物面鏡の最後の 1 組には穴を開けてプローブ光が透過できるようにしている。

次にプローブ光の説明に移る。BS を透過した後、グラン・トムソンプリズムを用いてプローブ光を完全に直線偏光にした。プローブ光の偏光方向は光学定盤の面に対して垂直である。よって  $\hat{X}$  も光学定盤の面に対して垂直である (図 3.5 参照)。プローブ光は穴空き放物面鏡を通して EO 結晶に入射され、バランス検出のスキームの通り QWP、WP を通過してバランス検出器に入射される。QWP の角度はできるだけ正確に 45° に設定し、EO 結晶の残留複屈折に由来する信号をできるだけ抑えた [20]。なお、残留複屈折については『付録 B』にて詳しく説明する。

### 3.7.2 回転電気光学結晶法による電場ベクトルの測定方法

テラヘルツ電場ベクトル波形の測定には回転 EO 結晶法を使用するので、同手法について説明する [18, 37, 56]。

回転 EO 結晶法では EO 結晶を回転させて、一定の角度間隔で離散的にバランス検出信号を検出し、式 (83)~(86) で示した  $\xi_i (i = 1 - 4)$  を求める。この時、重要なのが EO 結晶の回転周波数、チョッパーによるテラヘルツ波の ON・OFF の変調周波数、A/D 変換の周波数、測定開始トリガーの周波数の 4 つの周波数を正確に同期させることである。理想的には光源の繰り返し周波数も同期した方が良いが、本測定で使用する光源は繰り返し周波数 80 MHz の高繰り返し周波数の光源である。この繰り返し周波数は

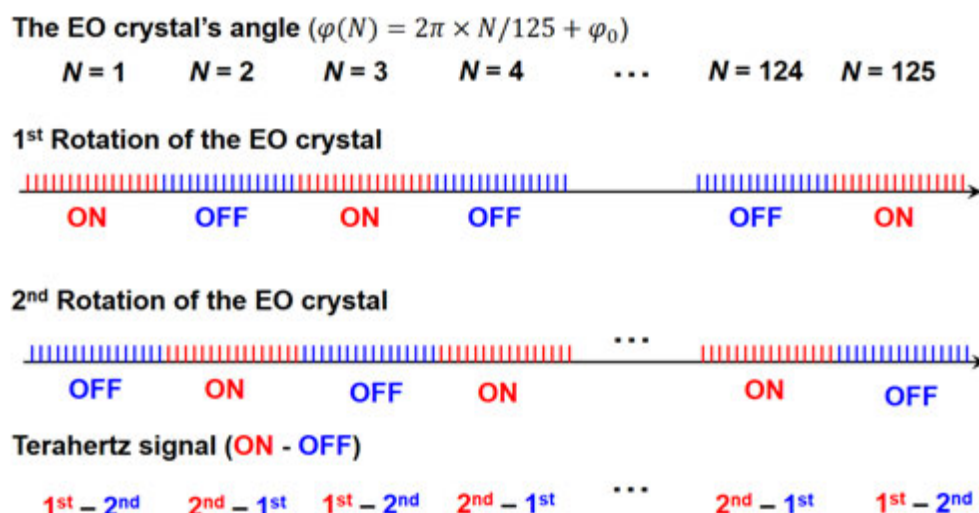


図 3.6: 回転 EO 結晶法測定のためのタイミングチャート。コム (comb)1 本 1 本が A/D 変換によってパソコン上に収録されるバランス検出信号  $S(\tau)$  を表している。EO 結晶 1 周分 (角度  $\varphi$  が  $0 \sim 2\pi$  だけ変化する間) を 125 等分して測定を行う。 $\varphi(N)$  は  $N$  番目の測定時における EO 結晶の角度を表す。ON, OFF は光学チョッパーによるテラヘルツ電場の ON, OFF を表している。ある角度  $\varphi(N)$  にて 1 周目でテラヘルツ電場が ON(OFF) なら 2 周目ではテラヘルツ電場は OFF(ON) になる。ON と OFF の差分を取ることでノイズを減らして  $S(\tau)$  を測定できる。

数百 kHz の A/D 変換の周波数と比べて非常に速い。そこで今回の実験では CW 光源と近似し、変調周波数らは光源の繰り返し周波数に対して同期させていない。

回転 EO 結晶法測定のためのタイミングチャートを図 3.6 に示す。図 3.6 のコム (comb)1 本 1 本が A/D 変換によってパソコン上に収録されるバランス検出信号  $S(\tau)$  を表している。図 3.6 の ON, OFF は光学チョッパーによるテラヘルツ電場の ON, OFF を表している。4 つの変調周波数だが、まず一番遅いトリガー周波数を  $f$  とする ( $f = 40 \text{ Hz}$ ) と、回転モーターの回転周波数はその 2 倍の  $2f$  となっている。つまり 1 サイクルの測定中に EO 結晶は 2 回転する。図 3.6 の 1<sup>st</sup>、2<sup>nd</sup> Rotation はそれぞれ EO 結晶の 1、2 周目を表す。チョッパーの変調周波数は  $125f$  であり、EO 結晶が 1 周回転する間にテラヘルツ電場の ON/OFF が 125 回切り替わる。A/D 変換の周波数は  $4000f$  であり、チョッパーの変調周波数の 32 倍である。よってチョッパーが ON(OFF) の間に収録されるバランス検出信号  $S(\tau)$  は  $16 (= 4000f/125f \times 2)$  個ある。

EO 結晶が 1 回転する間に ON/OFF が 125 回切り替わるので、EO 結晶の角度  $\varphi$  を  $\varphi(N) = 2\pi \times N/125 + \varphi_0$  と 125 等分する。125 は奇数であるので EO 結晶 1 周目が ON  $\rightarrow$  OFF  $\rightarrow$  ON  $\cdots$  になるなら 2 周目は OFF  $\rightarrow$  ON  $\rightarrow$  OFF  $\cdots$  になる。ON と OFF の差分を求めれば残留複屈折のノイズを低減させて、角度  $\varphi(N)$  でのバランス検出信号  $S(\tau)$  を求めることができる。残留複屈折については『付録 B』で説明する。チョッパーが ON(OFF) の間に収録されるバランス検出信号 16 個間は平均して取り扱う。この 16 個のデータ間では、角度  $\varphi$  の値が多少異なるが、その点は無視する。なお周波数同期の設計は文献 [56] と同様である。ただ本研究では文献 [56] と比べて全ての変調周波数を  $\frac{5}{3}$  倍にしている。チョッパーの変調周波数を 5 kHz に設定した時に一番 S/N 比が高かった為、上記の変調周波数の組み合わせを使用した。次節では実験結果について説明する。

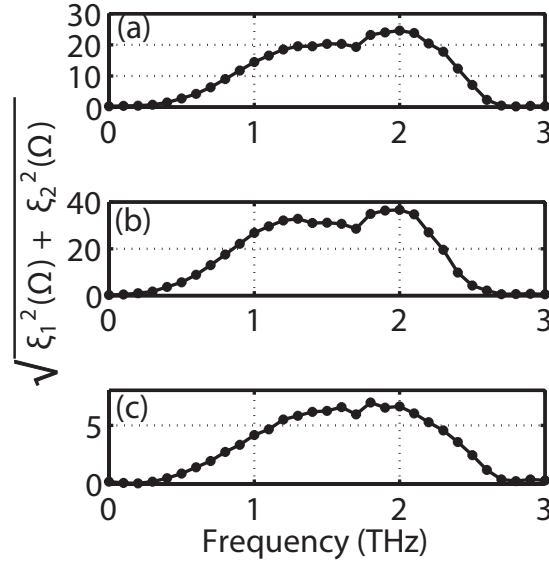


図 3.7: 3 種類の EO 結晶 ((a)ZnTe 1 mm、(b)ZnTe 2 mm、(c)GaP 0.4 mm) を使用して測定された  $\sqrt{\xi_1^2(\Omega) + \xi_2^2(\Omega)}$  のスペクトル。  $\sqrt{\xi_1^2(\Omega) + \xi_2^2(\Omega)}$  は楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形の  $\Omega$  成分の電場振幅に相当する。Reprinted with permission from ref [53], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **31**, 3170-3180 (2014))

### 3.7.3 実験結果

本実験検証では 3 種類の EO 結晶 (ZnTe 1 mm、ZnTe 2 mm、GaP 0.4 mm) を使用して楕円偏光テラヘルツ電場の時間波形を測定した。前節で説明した通り、使用する EO 結晶以外の測定条件は全て一緒である。3 種類の EO 結晶を使用して、回転 EO 結晶法により式 (19) に示したバランス検出信号  $S(\tau, T)$  を測定し、 $S(\tau, T)$  から  $\xi_i(\tau)$  ( $i = 1-4$ ) を求めた。本章で示した理論構築の結果は測定された電場ベクトル波形  $\xi_i(\tau)$  について何も説明していない為、電場ベクトル波形の測定結果は掲載しない。一方で電場ベクトルの波形のスペクトルに関しては、式 (87) より  $\sqrt{\xi_1^2(\Omega) + \xi_2^2(\Omega)} = |f(\Omega)E_{1X}(\Omega) + f(\Omega)E_{1Y}(\Omega)|$  の関係が成立するので、これが電場ベクトル波形のスペクトルに対応する。

図 3.7 に楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形のスペクトルを示す。図 3.7(a)-(c) の全てのスペクトルにて 1.7 THz 付近にディップが見られる。これは水蒸気による吸収である [55]。測定系全体を囲って乾燥空気を流しているが、完全に水蒸気を排除できなかった為、残留する水蒸気の吸収が見えている。図 3.7(a), (b) の ZnTe を使用して測定されたスペクトルでは 2.3 THz 付近から急激にスペクトル強度が低下している。一方、図 3.7(c) の GaP を使用して測定されたスペクトルでは 2.3 THz 付近でのスペクトル強度の低下がなだらかになっている。これは GaP 結晶の方が 2-3 THz の周波数域にて位相整合が取れる為である [28]。

また 3 種類の EO 結晶を使用して測定された楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形の楕円率角 ( $\theta(\Omega)$ ) 及び旋光角 ( $\Psi(\Omega)$ ) のスペクトルをそれぞれ図 3.8、図 3.9 に示す。

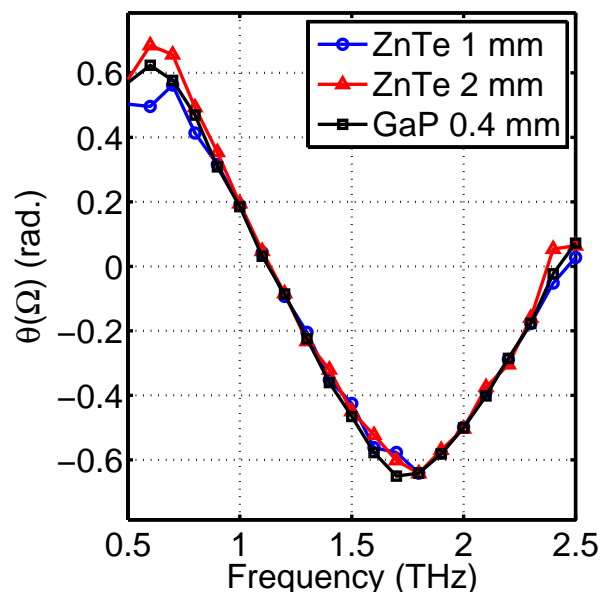


図 3.8: 3 種類の EO 結晶 (ZnTe 1 mm、ZnTe 2 mm、GaP 0.4 mm) を使用して測定された楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形の楕円率角  $\theta(\Omega)$  スペクトル [53]。使用した複屈折板は 0.6 THz 近傍で 1/4 波長板として機能するように厚さが最適化されており、0.6 THz 近傍では設計通り円偏光 ( $\theta = \pi/4$ ) に近い偏光状態になっていることが分かる。Reprinted with permission from ref [53], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **31**, 3170-3180 (2014))

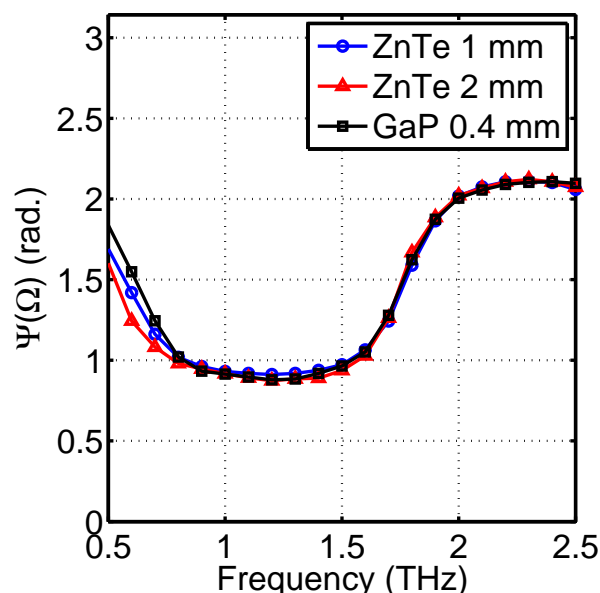


図 3.9: 3 種類の EO 結晶 (ZnTe 1 mm、ZnTe 2 mm、GaP 0.4 mm) を使用して測定された楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形の楕円率角  $\Psi(\Omega)$  スペクトル [53]。Reprinted with permission from ref [53], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **31**, 3170-3180 (2014))

0.7-2.5 THz の周波数域では 3 つの楕円率角 ( $\theta(\Omega)$ )、旋光角 ( $\Psi(\Omega)$ ) のスペクトルがよい一致を示した。0.7-2.5 THz の外では 3 つのスペクトルに小さい不一致が見られた。これは 0.7-2.5 THz の外ではスペクトル強度が弱い (図 3.7 参照) 為、測定精度があまり高くなく、小さい不一致が見られたと考えられる。楕円率角  $\theta(\Omega)$  及び旋光角  $\Psi(\Omega)$  スペクトルの実験結果については以下のように考察することができる。まず、使用した複屈折板は 0.6 THz で QWP として機能するように厚さ  $d$  が最適化された複屈折板である。複屈折板の遅軸と速軸間の位相差  $C$  は遅軸と速軸の屈折率差  $\Delta n$  が周波数に依らない場合、以下に示すように  $C$  は角周波数  $\Omega$  に比例する。

$$C = \frac{\Delta n d \Omega}{c} \quad (89)$$

式 (89) より、 $\Omega$  が 2 倍になれば、つまり周波数が二倍 (1.2 THz) になれば、1/2 波長板として機能することが予想される。同様に 1.8 THz では 3/4 波長板として、2.4 THz では 1 波長板として機能することが予想される。実際に図 3.8 にて、0.6 THz、1.2 THz、1.8 THz、2.4 THz での楕円率角  $\theta(\Omega)$  は、それぞれ  $+\pi/4$  ( $\approx 0.78$ )、0、 $-\pi/4$ 、0 と予想に近い値となっている。0.6 THz、1.8 THz にて楕円率角の絶対値  $|\theta(\Omega)|$  が予想値よりもやや小さいのは QWP の遅軸と直線偏光のテラヘルツ電場ベクトルの向きが  $\pm 45^\circ$  から少しだけ外れた値になっていたからである。次節では QWP の遅軸と直線偏光のテラヘルツ電場ベクトルの向きをより正確に調べる為にポアンカレ球を用いて解析を行う。

本章の理論構築の主張は『どんな EO 結晶を使用しても正確に偏光パラメータを測定できる』である。そして、実際に厚さや組成の異なる 3 つの EO 結晶を用意し、それぞれの EO 結晶を使用して電場ベクトル波形を測定した。測定された振幅スペクトルは EO 結晶ごとに異なっていた。しかし、楕円率角、旋光角のスペクトルはよく一致していた。これは式 (88) で示した通り、結晶ごとに異なる  $f(\Omega)$  がキャンセルされる為である。このように実験結果は本章で示した理論構築の主張を支持している。

### 3.7.4 ポアンカレ球を用いた実験結果の考察

本節ではポアンカレ球を用いて楕円率角  $\theta(\Omega)$  及び旋光角  $\Psi(\Omega)$  スペクトルの実験結果について更に詳細に考察する。2 つのスペクトル結果について説明することができれば、本章の主張 (EO 結晶内部での位相不整合や吸収に依らず、楕円率角  $\theta(\Omega)$  及び旋光角  $\Psi(\Omega)$  の測定ができる) をより強固に裏付けることができるからである。ただ本節の内容は今までの内容とは直接かわりがないことを予め明記しておく。

実際に複屈折板透過後の各周波数成分の偏光状態をポアンカレ球上に示した結果を図 3.10 に示す。図 3.10 では全ての周波数成分がポアンカレ球上で同一の円周上にいる、と仮定しフィッティングによりその円を求めた。全ての周波数成分の偏光状態が図 3.10 の灰色の円周上にほぼ乗っていることが分かる。これは全ての周波数で複屈折板透過前の偏光状態 (ポアンカレ球上の座標) と複屈折板の遅軸の向き (角度  $\alpha$ ) が等しく、複屈折板の位相差  $C$  だけが周波数ごとに異なることを示している (図 2.9 参照)。また複屈折板透過前のテラヘルツ波は全て直線偏光である為、周波数に依らず赤道上的点  $Q$  にいる。点  $Q$  からの距離は周波数に比例して増加しているので複屈折板の位相差  $C$  は周波数に比例している事が分かる (図中の 0.5, 1.0, 1.5, 2.0 THz の位置に注目)。

次に複屈折板の遅軸と基準軸 ( $\hat{X}$ ) の角度 ( $\alpha$ )、複屈折板透過前のテラヘルツ電場ベクトルと基準軸 ( $\hat{X}$ ) の角度 ( $\Psi_0$ ) について調べたいと思う。まずフィッティングから求めた円の中心  $O'$  と原点  $O$  を結ぶ直線  $O'O$  を延長する。ポアンカレ球の球面と直線  $O'O$  の交点を点  $P$  とする。直線  $PO$  の回りを反時計回りに回転しているので角度  $\alpha$  の 2 倍は図中の角度  $2\varphi'$  と等しい。 $2\varphi' = 172^\circ$  より角度  $\alpha = 86^\circ$  である。次に複屈折板透過前は点  $Q$  にいたテラヘルツ電場と基準軸 ( $\hat{X}$ ) の角度  $\Psi_0$  であるから図から  $\Psi_0 = -58^\circ$  であることが分かった。従って複屈折板透過前のテラヘルツ電場ベクトルと複屈折板の遅軸のなす角度は  $36^\circ$  である。これらの角度を図 3.11 に図示する。目測で複屈折板透過前のテラヘルツ電場ベクトルと複屈折板の遅軸のなす角度を  $45^\circ$  に合わせたので、大体近い値と言えるだろう (テラヘルツ電場ベクトルの向きは WG 偏光子の線の向きから予想した)。



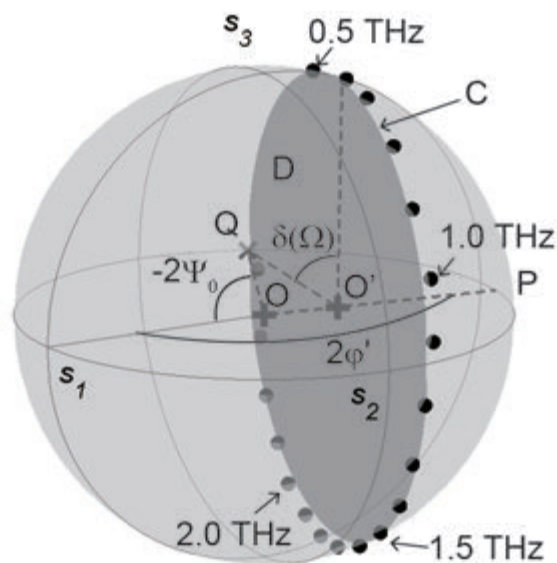


図 3.10: 複屈折板透過後の各周波数成分の偏光状態をポアンカレ球上に示した結果 [53]。Reprinted with permission from ref [53], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **31**, 3170-3180 (2014))

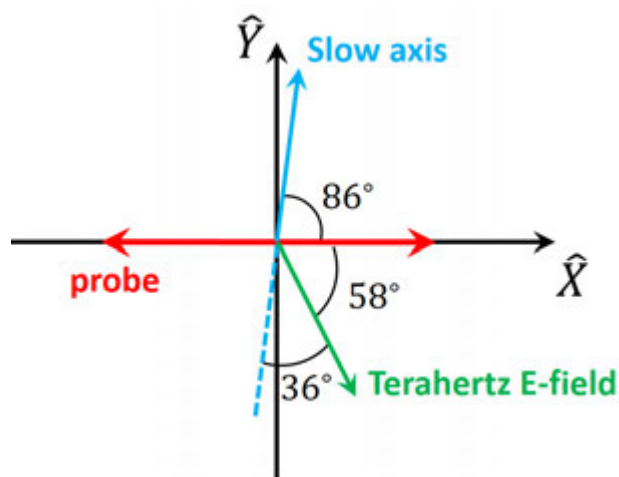


図 3.11: 複屈折板透過前のテラヘルツ電場ベクトル、複屈折板の遅軸、基準軸 ( $\hat{X}$ ) のなす角度を示した図。

### 3.8 本章のまとめ

本章では位相不整合下での楕円偏光の電場ベクトル波形を EO 検出で検出した際の理論構築を行った。理論構築は Gallot と Grischkowsky が示した周波数混合描像を楕円偏光の場合に拡張し、行った。

構築した理論によれば、EO 結晶内の位相不整合や吸収の効果などは各周波数成分の偏光状態を計測する上ではキャンセルされ、どんな閃亜鉛結晶型の EO 結晶を使用しても偏光分光ができるということが分かった。実験検証では 3 枚の異なる EO 結晶を用意して、それぞれの EO 結晶を使用して電場ベクトル波形を測定し、各周波数成分の偏光状態を計測した。EO 結晶を変更して測定された 3 つの楕円率角と旋光角はよく一致しており、どんな閃亜鉛結晶型の EO 結晶を使用しても偏光分光ができる、という主張を裏付けることができた。

本章で示した理論構築では非線形分極がある時の Maxwell 方程式を基礎方程式として使用している。Maxwell 方程式はあらゆる周波数の電磁波、あらゆる非線形光学結晶の内部で利用できる方程式である。本章で示した内容はあらゆる周波数の電磁波、あらゆる非線形光学結晶にて適用できる非常に普遍性のある理論といえる。

## 第4章 電気光学結晶の対称性を用いたテラヘルツ電場ベクトル波形の復元

### 4.1 本章の構成 (時間領域での解釈の必要性)

前章の理論構築の結果、測定された電場ベクトル波形を周波数分解すれば楕円率角・旋光角を正確に測定できることが分かった。また、その実験検証に成功した。

本章では、更に理論を拡張して周波数分解される前の電場ベクトル波形について議論する。第1章で説明した通り、近年、時間波形測定を応用した様々な測定 [2-5, 7] が行われている。このような応用をより発展させていくには正確な電場ベクトル波形の測定が必要である。しかし、位相不整合や吸収などの効果により空气中を伝搬する電場ベクトル波形を正確に測定することはできない。この問題に対して、まず測定される電場ベクトル波形について解釈し、どうすれば空气中を伝搬する波形を正確に復元できるかを明らかにする。次に実験検証として異なる EO 結晶を用いて測定された電場ベクトル波形から実際に空气中を伝搬する波形を復元する。なお、本章で示す内容は以下の論文に纏めてある。

K. Oguchi *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **34**, pp 1946-1956 (2017).

### 4.2 時間領域での電気光学信号導出の目的

Gallot と Grischkowsky は直線偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形を位相不整合下で検出した時の EO 信号を式 (36) のように記述した。またプローブ光の周波数領域の帯域  $\Delta\omega$  がプローブ光の中心周波数  $\omega_0$  に比べて十分に小さい時、式 (36) は Bakker ら [26] が導入した二重積分の式 (39) に変形することができる。本節では、この二重積分の式を楕円偏光の場合に拡張する。

図 1.7 に示した通り楕円偏光を検出する場合、EO 結晶内部でプローブ光と時空間的に重なる電場ベクトルの大きさと向きが時々刻々と変化してしまう。その為、測定から得られる電場ベクトルの振幅  $E_{\text{THz}}$  と電場ベクトルの向きを表す角度  $\gamma$  の物理的な意味を理解する必要がある。そこで楕円偏光を検出した際の二重積分の式を導出し、測定される  $E_{\text{THz}}$  と角度  $\gamma$  の解釈を明らかにする。

### 4.3 時間領域での電気光学信号の導出

本節では、時間領域での電気光学信号導出を行う。まず周波数領域から時間領域へ変換する為に必要となる変数を新たに定義する。その後、実際に式変形を行い時間領域での電気光学信号を導出する。式変形に関しては Gallot と Grischkowsky の直線偏光の時の式変形と類似点が多いが、その後 Jamison らが指摘しているように Gallot と Grischkowsky の式変形には誤りが多い。そこで本節では本研究独自の式変形を示す。最後に直線偏光の解釈に関する先行研究らとの比較について言及する。

#### 4.3.1 周波数領域から時間領域への変換

第3章ではテラヘルツ電場を長軸方向の電場振幅  $A_1''(\Omega)$ 、短軸方向の電場振幅  $B_1''(\Omega)$ 、旋光角  $\Psi(\Omega)$  といった周波数領域でのパラメーターで表現していた。一方、本章では時間領域での解釈を行う為に

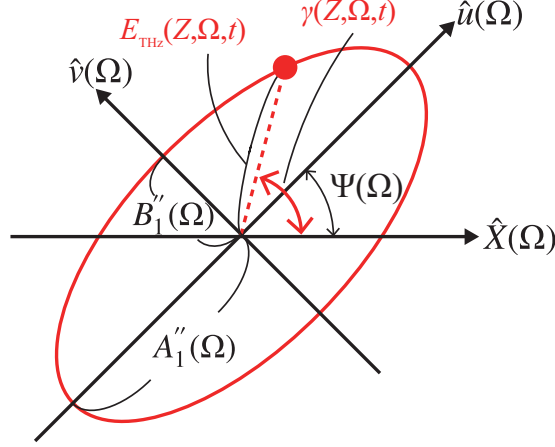


図 4.1: 位置  $Z$  と時間  $t$  での角周波数  $\Omega$  の楕円偏光の電場の振幅  $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$ 、偏光方向  $\gamma(Z, \Omega, t)$  の定義 [54]。Reprinted with permission from ref [54], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **33**, 1946-1956 (2017))

テラヘルツ電場を  $E_{\text{THz}}$  と  $\gamma$  で表現する必要がある。そこで  $A_1''(\Omega)$ 、 $B_1''(\Omega)$ 、 $\Psi(\Omega)$  を  $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$ 、 $\gamma(Z, \Omega, t)$  に変換する為に以下の変換式を導入する。

$$E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t) \equiv \frac{A_1''(\Omega)B_1''(\Omega) \exp(-\beta_1(\Omega)Z)}{\sqrt{A_1''(\Omega)^2 \sin^2(\gamma(Z, \Omega, t) - \Psi(\Omega)) + B_1''(\Omega)^2 \cos^2(\gamma(Z, \Omega, t) - \Psi(\Omega))}} \quad (90)$$

$$\gamma(Z, \Omega, t) - \Psi(\Omega) = \begin{cases} \tan^{-1} \left[ \frac{B_1''(\Omega)}{A_1''(\Omega)} \tan \left\{ k_1^R(\Omega)Z - \Omega t + \phi_1(\Omega) \right\} \right] \\ \left( \sin \left\{ k_1^R(\Omega)Z - \Omega t + \phi_1(\Omega) \right\} \geq 0 \right) \\ \tan^{-1} \left[ \frac{B_1''(\Omega)}{A_1''(\Omega)} \tan \left\{ k_1^R(\Omega)Z - \Omega t + \phi_1(\Omega) \right\} \right] + \pi \\ \left( \sin \left\{ k_1^R(\Omega)Z - \Omega t + \phi_1(\Omega) \right\} < 0 \right) \end{cases} \quad (91)$$

上記 2 式は楕円の式  $\left( \frac{x^2}{A_1''^2} + \frac{y^2}{B_1''^2} = 1, x = A_1'' \cos(\gamma - \Psi), y = B_1'' \sin(\gamma - \Psi) \right)$  を用いれば得られる。また図 4.1 に電場の振幅  $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$ 、偏光方向  $\gamma(Z, \Omega, t)$  の定義を図示する。

#### 4.3.2 時間領域での電気光学信号の導出

本小節では楕円偏光テラヘルツ波を測定する場合  $S(\tau)$  は以下のように変形できることを示す。

$$S(\tau) \propto \int_0^l dZ \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{opt}}(Z, t - \tau) P_{\text{EO}}(Z, t, \varphi) dt \quad (92)$$

ここで  $I_{\text{opt}}(Z, t - \tau)$  はプローブ電場強度であり、式 (33) の通りである。 $P_{\text{EO}}(Z, t, \varphi)$  は以下のように記述できる。

$$P_{\text{EO}}(Z, t, \varphi) \propto \int_0^\infty \chi^{(2)}(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) \times E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t) (\cos(\varphi + \gamma(Z, \Omega, t)) + 3 \cos(3\varphi - \gamma(Z, \Omega, t))) d\Omega \quad (93)$$

これは Bakker らが導入した二重積分の式を楕円偏光の電場ベクトル波形を検出した場合に拡張した式である。本節では式 (92) の導出手順を説明する。時刻  $t$ 、位置  $Z$  の 2 重積分で表現される式 (92) を求める為、式 (75) の関数  $f(\Omega)$  を変形する。まず位置  $Z$  の積分を得る為、 $\Delta k$  を含む式を以下のように変形する。

$$\begin{aligned} f(\Omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} A_2'^*(\omega_3) A_2'(\omega_3 - \Omega) e^{-2\beta_3(\omega_3)l} \cdot d(\omega_3; \Omega, \omega_3 - \Omega) \\ &\quad \times \frac{\varepsilon_0 \omega_3^2}{ck_3^R(|\omega_3|)} \frac{e^{i\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)l} - 1}{i\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)} d\omega_3 \\ &= \int_0^l \int_{-\infty}^{+\infty} g(\omega_3) \cdot e^{-2\beta_3(\omega_3)l} A_2'^*(\omega_3) A_2'(\omega_3 - \Omega) \cdot \\ &\quad d(\omega_3; \Omega, \omega_3 - \Omega) e^{i\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)Z} d\omega_3 dZ \end{aligned} \quad (94)$$

ここで  $g(\omega_3) \equiv \frac{\varepsilon_0 \omega_3^2}{ck_3^R(|\omega_3|)}$  と定義した。また下付きの添え字は便宜的な物であるので全ての角周波数  $\omega$  で  $k_2(\omega) = k_3(\omega)$  が成立することを使用した。一般に THz-TDS 測定系で使用されている光源は中心波長 800 nm (中心周波数 375 THz) ほどで、パルス幅は約 100 fs ほどのフーリエ限界パルスである。このフーリエ限界パルスをガウシアン型パルスと仮定すると、周波数領域での半値全幅 (Full width half maximum)  $\Delta\omega$  は  $1.665\tau_p^{-1}$  となり [57]、 $\Delta\omega \approx 2\pi \times 2.65$  THz である。これはプローブ光の中心角周波数  $\omega_0 = 2\pi \times 375$  THz と比べて非常に小さいと言って良く ( $\Delta\omega \ll \omega_0$ )、 $\omega_3 \approx \omega_0$  とおくことができる。この時、以下の近似が成立する。

- (1)  $g(\omega_3) \approx g(\omega_0)$  [29],
- (2)  $\beta_3(\omega_3) \approx \beta_3(\omega_0)$ ,
- (3)  $d(\omega_3; \Omega, \omega_3 - \Omega) \approx d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega)$ .

(3) の近似を得るには以下のようにミラー則 [58] を使用する。まず、ミラー則を用いて  $d$  を 3 つの  $\chi$  に分解する： $d(\omega_3; \Omega, \omega_3 - \Omega) \propto \chi(\omega_3)\chi(\Omega)\chi(\omega_3 - \Omega)$ 。ここで  $\omega_3 \approx \omega_0$  を用いて  $\chi(\omega_3) \approx \chi(\omega_0)$ 、 $\chi(\omega_3 - \Omega) \approx \chi(\omega_0 - \Omega)$  とする。最後にミラー則を用いて 3 つの  $\chi$  を  $d$  に戻す。式 (76) の  $f(\Omega)$  に式 (94) に示した  $f(\Omega)$  を代入すると  $S(\tau)$  は以下のように記述できる。

$$\begin{aligned} S(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \int_0^l dZ \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega_3 \cdot g(\omega_3) \cdot e^{-2\beta_3(\omega_3)l} A_2'^*(\omega_3) A_2'(\omega_3 - \Omega) \cdot d(\omega_3; \Omega, \omega_3 - \Omega) \\ &\quad \times e^{i\Delta k(\Omega, \omega_3 - \Omega, \omega_3)Z} \left[ A_1'(\Omega) \left\{ \frac{3}{2} \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{2} \cos(\Psi(\Omega) + \varphi) \right\} \right. \\ &\quad \left. + iB_1'(\Omega) \left\{ \frac{3}{2} \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{2} \sin(\Psi(\Omega) + \varphi) \right\} \right] \exp(-i\Omega\tau) \end{aligned} \quad (95)$$

ここで角周波数  $\Omega$  のテラヘルツ電場に関する部分は暫く式変形をしないので、以下のような省略形  $H''(\Omega, \varphi)$  を用いて記述する。

$$H''(\Omega, \varphi) = H_R''(\Omega, \varphi) + iH_I''(\Omega, \varphi), \quad (96)$$

$$H_R''(\Omega, \varphi) \equiv A_1''(\Omega) \left[ \frac{3}{4} \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{4} \cos(\Psi(\Omega) + \varphi) \right], \quad (97)$$

$$H_I''(\Omega, \varphi) \equiv B_1''(\Omega) \left[ \frac{3}{4} \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + \frac{1}{4} \sin(\Psi(\Omega) + \varphi) \right]. \quad (98)$$

省略形  $H''(\Omega, \varphi)$  を用いると式 (95) で示した  $S(\tau)$  は以下のように記述できる。

$$\begin{aligned} S(\tau) \approx & g(\omega_0) \cdot e^{-2\beta_3(\omega_0)l} \int_0^l \int_{-\infty}^{+\infty} d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) H''(\Omega, \varphi) \\ & \times e^{ik_1(\Omega)Z - i\Omega\tau + i\phi_1(\Omega)} e^{2\beta_3(\omega_0)Z} \\ & \times \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} A_2^*(Z, \omega_3) A_2(Z, \omega_3 - \Omega) d\omega_3 \right] d\Omega dZ \end{aligned} \quad (99)$$

次に以下のようなフーリエ変換の式を使用して電場波形  $E_2(Z, t)$  を得る。

$$A_2(Z, \omega_3) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E_2(Z, t') e^{-i\omega_3 t'} dt' \quad (100)$$

$$A_2^*(Z, \omega_3 - \Omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E_2(Z, t'') e^{i(\omega_3 - \Omega)t''} dt'' \quad (101)$$

式 (100)、(101) を式 (99) に代入する。

$$\begin{aligned} S(\tau) \approx & g(\omega_0) \cdot e^{-2\beta_3(\omega_0)l} \int_0^l dZ \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \cdot d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) H''(\Omega, \varphi) \\ & \times e^{ik_1(\Omega)Z - i\Omega\tau + i\phi_1(\Omega)} e^{2\beta_3(\omega_0)Z} \\ & \times \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} E_2(Z, t') E_2(Z, t'') e^{-i\omega_3(t' - t'')} e^{-i\Omega t''} dt' dt'' d\omega_3 \right] \end{aligned} \quad (102)$$

ここで  $\omega_3$  に依存する項は  $e^{i\omega_3(t' - t'')}$  だけである。これを積分すると  $\int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\omega_3(t' - t'')} d\omega_3 = 2\pi\delta(t' - t'')$  を得る。 $\delta(t' - t'')$  を用いて  $t''$  を消去すると式 (102) は以下ようになる。

$$\begin{aligned} S(\tau) \approx & g(\omega_0) \cdot e^{-2\beta_3(\omega_0)l} \int_0^l dZ \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \cdot d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) H''(\Omega, \varphi) \\ & \times e^{ik_1(\Omega)Z - i\Omega(\tau + t') + i\phi_1(\Omega)} e^{2\beta_3(\omega_0)Z} \\ & \times \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} (E_2(Z, t'))^2 e^{i\Omega t'} dt' \right] \end{aligned} \quad (103)$$

ここで  $t = \tau + t'$  と変数変換を行い、プローブ光の電場振幅の 2 乗  $(E_2(Z, t - \tau))^2$  を式 (33) に示したプローブ光電場の包絡線  $I_{\text{opt}}(Z, t - \tau)$  で近似する。すると式 (103) は以下ようになる。

$$\begin{aligned} S(\tau) \approx & g(\omega_0) \cdot e^{-2\beta_3(\omega_0)l} \int_0^l dZ \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \int_{-\infty}^{+\infty} dt \cdot d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) H''(\Omega, \varphi) \\ & \times e^{ik_1(\Omega)Z - i\Omega t + i\phi_1(\Omega)} I_{\text{opt}}(Z, t - \tau) \end{aligned} \quad (104)$$

ここで式 (90)、(91) に示した式を用いて、 $A_1''(\Omega)$ 、 $B_1''(\Omega)$ 、 $\Psi(\Omega)$  を  $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$ 、 $\gamma(Z, \Omega, t)$  に変換する為には  $d\Omega$  の積分範囲を 0 から  $+\infty$  にしなければならない。そこで式 (104) の  $d\Omega$  の積分範囲を 0 から  $+\infty$  に変更する。

$$\begin{aligned} S(\tau) \approx & g(\omega_0) \cdot e^{-2\beta_3(\omega_0)l} \int_0^l dZ \int_0^{+\infty} d\Omega \int_{-\infty}^{+\infty} dt \\ & \times \left[ d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) H''(\Omega, \varphi) e^{ik_1(\Omega)Z - i\Omega t + i\phi_1(\Omega)} + \text{c.c.} \right] I_{\text{opt}}(Z, t - \tau) \end{aligned} \quad (105)$$



ここで  $-\Omega$  成分と  $+\Omega$  成分は複素共役の関係にあるので、 $-\Omega$  成分を c.c. で表現した。式 (105) の  $\Omega$  を含む部分を式 (90)、(91) を用いて以下のように変形する。

$$\begin{aligned} & d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) H''(\Omega, \varphi) e^{ik_1(\Omega)Z - i\Omega t + i\phi_1(\Omega)} + \text{c.c.} \\ & = d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t) (\cos(\varphi + \gamma(Z, \Omega, t)) + 3 \cos(3\varphi - \gamma(Z, \Omega, t))) \end{aligned} \quad (106)$$

式 (106) を式 (105) に代入すると以下ようになる。

$$\begin{aligned} S(\tau) \approx & g(\omega_0) \cdot e^{-2\beta_3(\omega_0)l} \int_0^l dZ \int_0^{+\infty} d\Omega \int_{-\infty}^{+\infty} dt \cdot I_{\text{opt}}(Z, t - \tau) \\ & d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t) \left[ \cos(\varphi + \gamma(Z, \Omega, t)) + 3 \cos(3\varphi - \gamma(Z, \Omega, t)) \right] \end{aligned} \quad (107)$$

$d(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) \propto \chi^{(2)}(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega)$  の関係を用いて  $d$  を  $\chi^{(2)}$  にする。最後に式 (93) を式 (107) に代入すると式 (92) が得られる。

### 4.3.3 先行研究との比較について

本節ではバランス検出信号の比較を行う。前節の二重積分で示されるバランス検出信号 (式 (92)、(93) 参照) は位相不整合下で楕円偏光の電場ベクトル波形を検出した時の信号である。これらの式は位相不整合などの効果を無視すれば、先行研究での楕円偏光の電場ベクトル波形を検出した時の信号と一致するはずである。まず式 (93) の中身を見ると式 (18) のように  $\cos(\varphi + \gamma)$  と  $\cos(3\varphi - \gamma)$  の項が含まれていることが分かる。違いは角周波数  $\Omega$  に依存する位相不整合、吸収を考慮している為、式 (93) では角度  $\gamma$  が位置  $Z$ 、時間  $t$  によって変化することである。その為、式 (92)、(93) に対して以下の近似、位相整合が完全に満たされている ( $k_1^R(\Omega) - \frac{\Omega}{v_g} = 0$ )、吸収がない ( $\beta_1(\Omega) = 0$ )、プローブ光がデルタ関数のようにパルス幅の非常に小さいパルス光である ( $\tau_p \rightarrow 0$ )、非線形光学定数が周波数に依らない ( $\chi^{(2)}(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) = \text{const.}$ ) を適用すると式 (18) に示した複屈折描像から導出された結果と一致する。

次に直線偏光のテラヘルツ電場波形を解釈した時の先行研究 [29] との比較について述べる。まず直線偏光では短軸方向の電場振幅が  $B_1''(\Omega) = 0$  となる。また全ての周波数成分で電場ベクトルの向きが揃っているので  $\gamma(Z, \Omega, t) = \text{const.}$  となる。従って以下のような  $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$  を導入することができる。

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)}(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) \equiv \chi^{(2)}(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) (\cos(\varphi + \gamma) + 3 \cos(3\varphi - \gamma)) \quad (108)$$

更に式 (90) で示した  $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$  の定義は以下のように非常に簡単な式となる。

$$E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t) = A_1''(\Omega) \cos\left(k_1^R(\Omega)Z - \Omega t + \phi_1(\Omega)\right) \exp(-\beta_1(\Omega)Z) \quad (109)$$

式 (108) と式 (109) を式 (93) に代入すると、第 2 章の式 (40) で定義した  $P_{\text{EO}}(Z, t)$  を得ることができる。このようにテラヘルツ電場が直線偏光の場合は、位相不整合や吸収の有無に依らず式 (108) に示した  $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$  を導入できるが、テラヘルツ電場が楕円偏光の場合、 $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$  を導入することができない、または  $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$  を位置  $Z$ 、時間  $t$  の関数として記述しなければならない (i.e.  $\chi_{\text{eff}}^{(2)}(Z, t)$ )。これは第 1 章の図 1.7 に示したようにプローブ光と空間的に重なる電場ベクトルの向きが時々刻々と変化してしまうことと対応している。次節では時刻  $t$ 、位置  $Z$  に関する積分を解き、 $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$  と  $\gamma(Z, \Omega, t)$  の解釈を明らかにする。

#### 4.4 本章の理論構築の結論

本節では式 (92)、(93) で表現される時間領域の EO 信号の時刻  $t$ 、位置  $Z$  に関する積分を解くことで、測定から得られる振幅  $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$  と角度  $\gamma(Z, \Omega, t)$  の解釈を明らかにする。2 つの積分を解くと式 (92)、(93) は以下になる。

$$S(\tau) \propto I_0 \int_0^{+\infty} F(\Omega) \times E_{\text{THz}}\left(\frac{l}{2}, \Omega, \tau + \frac{l}{2v_g}\right) \cos\left(\varphi + \gamma\left(\frac{l}{2}, \Omega, \tau + \frac{l}{2v_g}\right)\right) + 3 \cos\left(3\varphi - \gamma\left(\frac{l}{2}, \Omega, \tau + \frac{l}{2v_g}\right)\right) d\Omega \quad (110)$$

ここで関数  $F(\Omega)$  は  $\Delta\omega \ll \omega_0$  が成立する際のテラヘルツ電場の検出効率を表す関数であり、以下のよう記述できる。

$$F(\Omega) = |\chi^{(2)}(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega)| \cdot \exp\left[\frac{-\Omega^2 \tau_p^2}{4}\right] \cdot \kappa(\Omega) \quad (111)$$

ここで  $\chi^{(2)}$  の虚部は実部と比べて非常に小さいので  $\chi^{(2)} \approx |\chi^{(2)}|$  と近似した。  $\kappa(\Omega)$  の以下のように定義する。

$$\kappa(\Omega) = \frac{1}{\sqrt{a^2(\Omega) + \beta_1^2(\Omega)}} \sqrt{\cos^2\left(\frac{a(\Omega)l}{2}\right) \sinh^2\left(\frac{\beta_1(\Omega)l}{2}\right) + \sin^2\left(\frac{a(\Omega)l}{2}\right) \cosh^2\left(\frac{\beta_1(\Omega)l}{2}\right)} \quad (112)$$

ここで  $a(\Omega)$  は以下のように定義され、位相不整合の大きさを表す。

$$\begin{aligned} a(\Omega) &\equiv k_1^R(\Omega) \left(1 - \frac{n_g}{n(\Omega)}\right) \\ &= k_1^R(\Omega) - \frac{\Omega}{v_g} \end{aligned} \quad (113)$$

式 (110) より、位置  $Z = \frac{l}{2}$ 、時間  $t = \tau + \frac{l}{2v_g}$  の振幅  $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$  と角度  $\gamma(Z, \Omega, t)$  に対応する電場ベクトルが信号  $S(\tau)$  から得られることが分かった。これより第 1 章にて、図 1.8、1.9 を用いて説明した問題が解決した。以下、図 4.2 を用いて詳しく説明する。

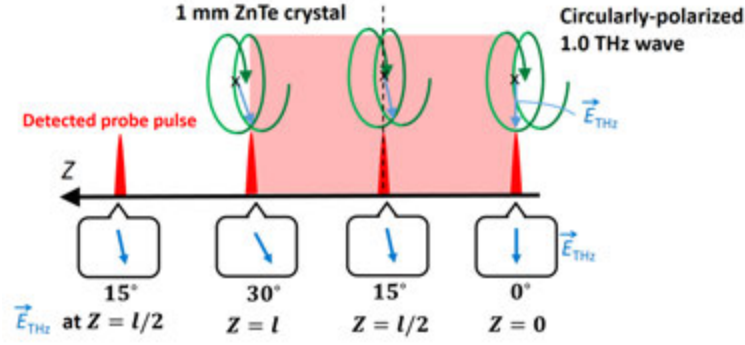


図 4.2: EO 検出法で測定されるテラヘルツ電場ベクトルについて。プローブ光の尖塔値がEO 結晶の中心 ( $Z = \frac{l}{2}$ ) に到達した時に、プローブ光の尖塔値と空間的に重なっている電場ベクトルを測定しているということを主張している。

まず図 1.8 で説明した通り、位相不整合の効果によりプローブ光と時間的に重なるテラヘルツ電場ベクトルの向きは時々刻々と変化する。図 4.2 にも、同様に電場ベクトルの向きが  $0^\circ$ 、 $15^\circ$ 、 $30^\circ$  と変化している様子が描かれている。

式 (33) よりプローブ光の尖塔値は時間  $t = \tau$  に位置  $Z = 0$  にいる。そして  $v_g$  の速度で EO 結晶内部を伝播し、プローブ光の尖塔値は時間  $t = \tau + \frac{l}{2v_g}$  に位置  $Z = \frac{l}{2}$  に到達する。つまり『プローブ光の尖塔値が結晶の中心に到達した時に、プローブ光の尖塔値と空間的に重なっている電場ベクトルを測定している』ことが分かった。図 4.2 でいうと、EO 結晶透過後のプローブ光を検出することで得られるテラヘルツ電場ベクトルの向きは  $Z = \frac{l}{2}$  での  $15^\circ$  である、ということが分かった。

しかし、実際に測定したいテラヘルツ電場ベクトル波形は時間  $t = \tau$  に位置  $Z = 0$  に於ける波形である。なぜなら、EO 結晶表面に於ける波形は EO 結晶内での位相不整合や吸収の影響などを受けていない、空気中を伝搬している時の波形だからである。つまり、 $Z = \frac{l}{2}$  では電場ベクトルの向きは  $15^\circ$  だったから  $Z = 0$  では電場ベクトルの向きは  $0^\circ$  であろうということを求める必要がある。この  $Z = \frac{l}{2}$  での角度と  $Z = 0$  での角度の関係は式 (1) から求めることができる。この補正を全ての周波数成分で行うことによって、空気中を伝搬している時の波形を復元することができる。

なお、詳細は『付録 C』で説明するが、式 (110) 以降では  $Z = \frac{l}{2}$  の電場ベクトルが測定できると説明していたが、厳密に計算を進めると  $Z = \frac{l}{2}$  から僅かにずれてしまうことが分かる。ただし、そのずれは非常に小さく、波形を解釈・復元する実用上、無視して差し支えない。それでは、次節では振幅の補正などを含めたより詳細な復元方法について説明する。

## 4.5 波形復元の実験検証

本節では、前節で得た解釈を利用して楕円偏光のテラヘルツ電場波形が復元できることを示す。EO 検出によって測定された楕円偏光のテラヘルツ電場波形は EO 結晶内部の位相不整合や吸収の効果によって歪んでしまう為、空気中を伝搬している時の波形と一致しない。そこで本節では関数  $F(\Omega)$ 、 $a(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$  などのパラメータを見積り、信号  $S(\tau)$  から空気中を伝搬している時の楕円偏光テラヘルツ電場波形を復元する。

次に具体的な波形復元の検証方法について説明する。測定系は前章の測定系 (図 3.5) と同じものを使用した。EO 結晶として (110) 面が切り出された厚さ 1 mm の ZnTe、厚さ 0.4 mm の GaP 結晶を用いた。この 2 種類の EO 結晶それぞれを使用して楕円偏光テラヘルツ波を測定し、得られた 2 つの波

形から空気中を伝搬する楕円偏光テラヘルツ電場波形を復元した。まず、電場ベクトル波形の測定方法・復元方法について説明する。

### I. 楕円偏光電場の X, Y 成分の測定

EO 結晶を回転させて  $\varphi = 0, -\pi/2$  とすれば、それぞれ電場ベクトル波形の X, Y 成分を測定することができる。式 (110) に  $\varphi = 0, -\pi/2$  を代入した時の結果を示す。まず  $\varphi = 0$  の時は以下のようなになる。

$$S_X(\tau) \propto \int_0^{+\infty} F(\Omega) \times E_{\text{THz}}\left(\frac{l}{2}, \Omega, \tau + \frac{l}{2v_g}\right) \cos \gamma\left(\frac{l}{2}, \Omega, \tau + \frac{l}{2v_g}\right) d\Omega \quad (114)$$

$\varphi = -\pi/2$  の時は以下のようなになる。

$$S_Y(\tau) \propto \int_0^{+\infty} F(\Omega) \times E_{\text{THz}}\left(\frac{l}{2}, \Omega, \tau + \frac{l}{2v_g}\right) \sin \gamma\left(\frac{l}{2}, \Omega, \tau + \frac{l}{2v_g}\right) d\Omega \quad (115)$$

### II. 各周波数成分ごとの検出効率 $F(\Omega)$ の補正

まず位相不整合や吸収による EO 結晶ごとの異なる検出効率の補正を行う。検出効率  $F(\Omega)$  は周波数に依存するので  $S_X(\tau), S_Y(\tau)$  の各周波数成分  $S_X(\Omega), S_Y(\Omega)$  ごとに分解して補正を行う必要がある。補正後、各周波数成分を足し合わせると以下のような位置  $Z = \frac{l}{2}$ 、時間  $t = \tau + \frac{l}{2v_g}$  での波形を復元することができる。

$$\begin{aligned} & \mathbf{E}_1(l/2, \tau + l/2v_g) \\ & \propto \frac{1}{2I_0} \int_{-\infty}^{+\infty} F^{-1}(\Omega) \left[ S_X(\Omega) \hat{X} + S_Y(\Omega) \hat{Y} \right] \exp(-i\Omega\tau) d\Omega. \end{aligned} \quad (116)$$

### III. EO 結晶の中心から EO 結晶の表面へ移動

式 (116) より位置  $Z = \frac{l}{2}$ 、時間  $t = \tau + \frac{l}{2v_g}$  での電場ベクトル波形を得ることができた。この位置と時間は結晶の厚さ  $l$ 、結晶内部の群速度  $v_g$  に依存する。つまり EO 結晶ごとに異なる位置と時間での波形を測定していることになる。そこで、最後にこの波形から位置  $Z = 0$ 、時間  $t = \tau$  での波形での電場ベクトル波形を求める。位置  $Z = \frac{l}{2}$ 、時間  $t = \tau + \frac{l}{2v_g}$  での位相と位置  $Z = 0$ 、時間  $t = \tau$  での位相の関係は以下のように記述できる。

$$k_1^R(\Omega)Z - \Omega\tau + \phi_1(\Omega) = k_1^R(\Omega)(Z + l/2) - \Omega(\tau + l/2v_g) + \phi_1(\Omega) - a(\Omega)\frac{l}{2} \quad (117)$$

つまり、位相に  $-a(\Omega)\frac{l}{2}$  を加えることで位置  $Z = 0$ 、時間  $t = \tau$  での位相を求めることができる。次に位置  $Z = 0$ 、時間  $t = \tau$  での振幅を求める。振幅の補正には EO 結晶内を  $l/2$  だけ進む間の吸収の補正  $\exp(+\beta_1(\Omega)l/2)$  が必要になる。以上を踏まえると、位置  $Z = 0$ 、時間  $t = \tau$  での波形での電場ベクトル波形  $\mathbf{E}_1(0, \tau)$  を求めることができる。

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_1(0, \tau) & \propto \left( \frac{2}{1 + \hat{N}(\Omega)} \right)^{-1} \\ & \times \frac{1}{2I_0} \int_{-\infty}^{+\infty} F^{-1}(\Omega) \times \exp \left[ (\beta_1(\Omega) - ia(\Omega)) \frac{l}{2} \right] \\ & \times \left[ S_X(\Omega) \hat{X} + S_Y(\Omega) \hat{Y} \right] \exp(-i\Omega\tau) d\Omega \end{aligned} \quad (118)$$

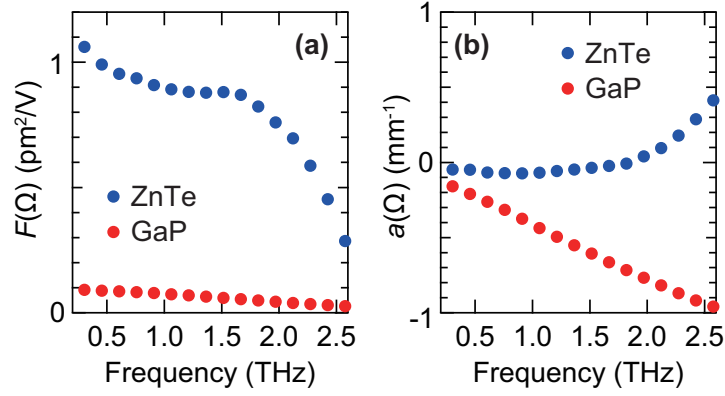


図 4.3: 厚さ 1 mm の ZnTe、厚さ 0.4 mm の GaP 結晶の (a) $F(\Omega)$  と (b) $a(\Omega)$  の周波数依存性 [54]. Reprinted with permission from ref [54], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **33**, 1946-1956 (2017))

以上のような手順により、電場ベクトル波形を測定し、測定された波形から空气中を伝搬する電場ベクトル波形を復元することができる。

次に実験手順について説明する。

#### I. 2 種類の EO 結晶の物性パラメーターを測定する

電場ベクトル波形の復元には  $F(\Omega)$ 、 $a(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$  の値が必要になる。これらの値を求めるには、EO 結晶の物性パラメーターである  $n_g$ 、 $n(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$ 、 $|\chi^{(2)}|$ 、プローブ光のパルス幅  $\tau_p$  が必要になる (式 (111)、式 (113) 参照)。実験検証では屈折率  $n_g$ 、 $n(\Omega)$  と吸収係数  $\beta_1(\Omega)$  を測定した。 $|\chi^{(2)}|$  は電気光学定数  $r_{41}$  に比例するので、 $r_{41}$  の文献値、 $r_{41} = 4\text{pm/V}$  (ZnTe)、 $r_{41} = 1\text{pm/V}$  (GaP) を使用した。プローブ光のパルス幅  $\tau_p$  は使用したレーザー光のスペック値  $\tau_p = 90\text{fs}$  を使用した。EO 結晶の屈折率、吸収係数の測定結果については文献 [28, 59] と同様の結果を示した為、ここでは割愛し、『付録 D』にて説明する。以降では、測定された屈折率、吸収係数を使用して求めた  $F(\Omega)$ 、 $a(\Omega)$  についてのみ言及する。

#### II. 2 種類の EO 結晶を用いて楕円偏光の電場ベクトル波形を測定する

楕円偏光テラヘルツ電場波形を作る為、前章と同様にテラヘルツ波の光路中に WG 偏光子と 0.6 THz 単色用の QWP を設置する (図 3.5 の pos B の位置)。EO 結晶として厚さ 1 mm の ZnTe、または厚さ 0.4 mm の GaP 結晶を設置し (図 3.5 の pos C の位置)、回転 EO 結晶法により楕円偏光の電場ベクトル波形を測定する。測定終了後、EO 結晶を入れ替え、同様に電場ベクトル波形を測定する。

実験手順 I. で測定されたパラメーターを使用して求めた 2 種類の EO 結晶の  $F(\Omega)$ 、 $a(\Omega)$  をそれぞれ図 4.3(a)、(b) に示す。次に  $S_X(\tau)$ 、 $S_Y(\tau)$  の測定結果を図 4.4 に示す。図 4.4 を見ると、EO 結晶を変えただけで測定された楕円偏光テラヘルツ波の振幅、位相が大きく変わってしまうことが分かんと思う。図 4.4 に示した 2 つの電場ベクトル波形の違いについて  $F(\Omega)$  と  $a(\Omega)$  の違いから説明する。まず電場振幅について説明する。GaP を用いて測定されたベクトル波形の振幅は ZnTe を用いて測定された波形の振幅と比べて  $1/7$  ほどしかなかった。この振幅の違いは検出効率  $F(\Omega)$  と吸収の 2 つの効果によって説明できる。まず、GaP の  $F(\Omega)$  は ZnTe と比べて  $1/10$  ほど小さい。次に EO 結晶内部を  $l/2$  進む間の吸収による減衰は ZnTe 結晶の方が GaP 結晶と比べて 1.5 倍ほど大きい。よって  $F(\Omega)$  と吸収の 2 つの効果を加味すると、GaP を用いた時の電場振幅は、ZnTe を用いた時と比べて  $1.5 \times 1/10 \approx 1/7$  ほどの大きさになる。

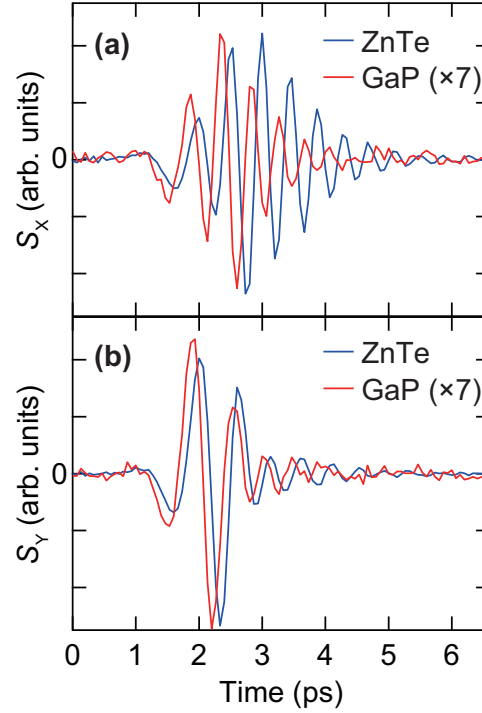


図 4.4: 厚さ 1 mm の ZnTe、厚さ 0.4 mm の GaP 結晶を使用して測定された楕円偏光テラヘルツ電場波形 [54]。2 つの波形を比較しやすくする為に GaP を使用して測定された波形は 7 倍拡大している。Reprinted with permission from ref [54], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **33**, 1946-1956 (2017))

次に電場ベクトル波形の位相について説明する。図 4.4 より、GaP を用いて測定された波形は、ZnTe を用いて測定された波形と比べて、位相が進んでいることが分かる。これは 2 つの結晶の  $a(\Omega)$  の符号によって説明することができる。ここでは電場強度が一番強い 2 THz 付近の  $a(\Omega)$  の符号から議論を進める。2 THz 付近の電場強度が一番強い為、この周波数帯での  $a(\Omega)$  の挙動が波形全体に強い影響を及ぼすからである (スペクトル情報は未掲載)。  $a(\Omega)$  の符号を見ると ZnTe では正の値を持つ。一方で GaP の  $a(\Omega)$  は負の値を持っていることが分かる。式 (113) より  $a(\Omega)$  が正 (負) ということは  $n_g < n(\Omega)$  ( $n(\Omega) < n_g$ ) であり、プローブパルスは 2 THz の電場波形よりも速く (遅く) 結晶内を伝搬する。その為、ZnTe(GaP) 結晶内を伝搬するプローブパルスを基準とすると、EO 結晶内で 2 THz の電場波形の位相は遅れて (進んで) いくことが分かる。したがって GaP 結晶を用いた時の方が測定された波形の位相が進んでいるのである。このように使用する EO 結晶を変えただけで測定された楕円偏光テラヘルツ電場ベクトル波形の形は大きく変わってしまうが、その波形の違いは本論文で導入されたパラメーター  $F(\Omega)$  と  $a(\Omega)$  を用いて正確に解釈することができた。

最後に 2 種類の EO 結晶それぞれを使用して測定された楕円偏光電場ベクトル波形から復元された空气中を伝搬する楕円偏光電場ベクトル波形を図 4.5 に示す。図 4.5 に示した波形では 0.3~2.6 THz の周波数範囲の電場成分のみを取り出して波形復元を行っていることを明記する。これは (111)ZnTe 結晶を用いて発生させたテラヘルツ波が 0.3~2.6 THz の周波数範囲で測定・復元に十分な電場強度を持つからである。復元前の波形 (図 4.4) と復元後の波形 (図 4.5) を比べると、波形復元によって位相不整合や吸収などの効果を取り除かれて波形がよく一致していることが分かる。復元前の波形 (図 TwoWaveforms 参照) では、GaP を用いた時の波形を 7 倍ほど拡大していたが、 $F(\Omega)$  と吸収の 2 つの効果を補償することによって、先ほどの説明通り、2 つの波形の振幅を一致させることができた。次に位相について説明する。ZnTe(GaP) 結晶を用いると、実際の電場波形と比べて、位相が遅れる (進



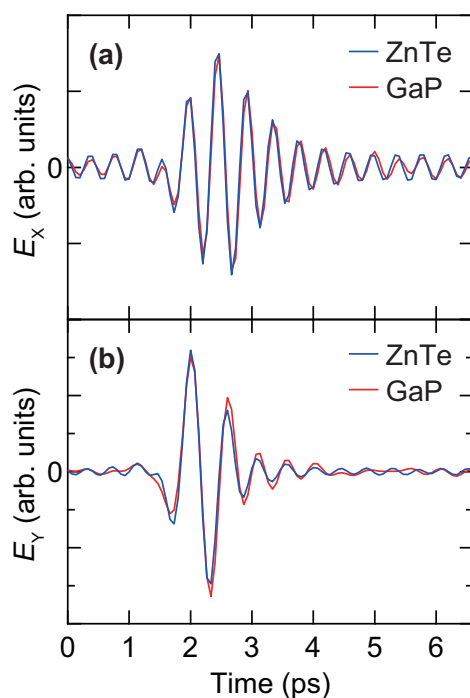


図 4.5: 厚さ 1 mm の ZnTe、厚さ 0.4 mm の GaP 結晶それぞれを使用して測定された楕円偏光電場ベクトル波形から復元された空气中を伝搬する楕円偏光電場ベクトル波形 [54]. Reprinted with permission from ref [54], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **33**, 1946-1956 (2017))

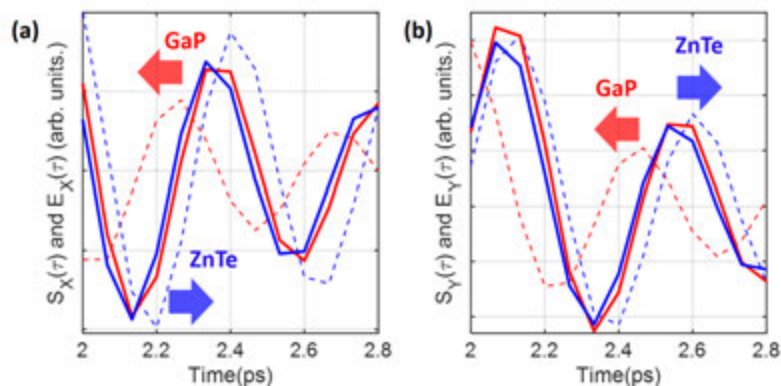


図 4.6: 復元前 (点線) と復元後 (実線) の電場ベクトル波形の位相の比較。ZnTe(GaP) 結晶を用いた時の波形を青線 (赤線) で表示している。復元後の波形と比べて復元前の波形は、ZnTe(GaP) 結晶を用いた場合、位相が遅れて (進んで) いることが分かる。この位相の違いは中心周波数 2 THz 付近での  $a(\Omega)$  の符号によって説明できる (詳細は本文中の記述を参照)。

む) ことを先ほど述べた。図 4.6 に復元前と復元後の電場ベクトル波形の位相の比較を示す。波形復元後の空气中を伝搬していると思われる波形と比べると、確かに ZnTe(GaP) 結晶を用いた場合の波形の位相は遅れて (進んで) いることが分かる。このように、波形復元によって異なる 2 つの電場波形を一致させることに成功し、また復元前後の波形の違いを本論文で示したパラメーターによって解釈することに成功した。

最後に復元後の X 成分に含まれる振動波形 (0~2 ps と 4 ps 以降の振動) について言及する。この振

動波形は 2.5 THz 付近のノイズ成分が増幅されたことによるノイズである。図 4.3(a) の  $F(\Omega)$  を見ると 2.5 THz 付近から検出効率が大きく低下していることが分かる。つまり、この周波数帯では検出効率が低い為、信号の SN 比が高くない。一方  $F(\Omega)$  の値が小さい為、 $F^{-1}(\Omega)$  の値は大きい。したがって  $F^{-1}(\Omega)$  を掛けて補正を行う時に、この周波数帯では信号と共にノイズ成分も増幅されやすい。0~2 ps と 4 ps 以降の振動波形はこうしたノイズに由来するアーティファクトであると思われる。より正確な波形復元を行う為には積算回数を増やして測定 SN を上げるなどの対策が必要になる。

さて以上の波形復元の実験検証結果から本章で示した波形復元方法を使用すれば、空气中を伝搬する電場ベクトル波形を正確に復元することができることが分かった。

## 4.6 本章のまとめ

前章では、周波数分解される前の測定された電場ベクトル波形については、空气中を伝搬する波形と測定される波形は異なる、ということしか述べていなかった。そこで本章では周波数混合描像に基づいて、EO 検出によって測定される電場ベクトル波形について解釈を行った。理論構築の結果、プローブ光が EO 結晶の中心に到達した時の時刻での電場ベクトル波形が測定によって得られるということが示された。よってプローブ光が EO 結晶の表面から中心まで伝搬する間に引き起こされた位相不整合や吸収の効果を各周波数成分で補正してベクトル波形を復元すれば、空气中を伝搬している時の正確なベクトル波形が復元できると考えられた。

本章の後半では、その主張を裏付ける為、実験検証を行った。具体的には異なる EO 結晶を用いて測定された電場ベクトル波形から実際に空气中を伝搬する波形の復元を行った。EO 結晶を変えると測定される電場ベクトル波形の振幅と位相は大きく変わってしまうが、今回提案した波形復元方法によって 2 つの異なる測定結果から共通の波形を復元することに成功した。第 1 章で説明した通り、近年時間波形測定を応用した様々な測定 [2-5, 7] が行われている。このような応用をより発展させていく上で、本章で示した波形復元方法は正確な電場ベクトル波形の測定・復元に大いに役立つと期待している。

## 第5章 対称性の異なる電気光学結晶を使用した偏光計測

### 5.1 本章の構成 (対称性の異なる結晶について)

第3、4章ではEO結晶として、(110)面で切り出されたZinc-blende型の点群 $\bar{4}3m$ 群に属する結晶(ZnTe、GaPなど)を使用した時の理論構築を行い、その実験検証を行った。そこで本章では対称性の異なるEO結晶の例として、*c-cut* GaSe結晶、(111)面で切り出されたZnTe結晶、*c-cut* LiNbO<sub>3</sub>結晶を使用して、第3章の時と同様に偏光分光測定を行う。わざわざGaSe結晶、LiNbO<sub>3</sub>結晶という別の結晶を用意して第3章と同様の事を繰り返すのは、GaSe結晶がZnTeやGaP結晶と比べて高周波数(およそ20 THz以上の周波数)で高い検出感度を持つからである[60,61]。その為、将来的にはGaSe結晶を用いた高周波の電場ベクトル波形計測を応用した円偏光二色性測定によるカイラリティーを持つ生体分子の測定(第1章参照)などが期待できる。一方、LiNbO<sub>3</sub>結晶は高い非線形光学定数を持つ[62,63]。その為、非常に薄いLiNbO<sub>3</sub>結晶を用いて、回折の影響を抑えたテラヘルツ電場の近接場観察に応用されている[64]。LiNbO<sub>3</sub>結晶を用いて偏光測定が可能になれば近接場の偏光状態を観察できる可能性がある。

上記3種類のEO結晶の結晶面の構造には3回対称性があり、その結果、EO(バランス検出)信号にも同様の対称性が見られた。そして、最後に定式化の結果が正しいか検証する為に、上記3つのEO結晶それぞれを用いて測定された楕円率角と旋光角のスペクトルを比較する。なお、本章で示す内容は以下の論文に纏めてある。

K. Oguchi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**, pp 0111105 (2016); Erratum, Appl. Phys. Lett. **112**, pp 029901 (2018).

### 5.2 電気光学信号の導出

本節では様々な対称性を持つEO結晶を用いた際のバランス検出信号を導出する際の計算手順について説明する。一般にバランス検出信号は、電場によって誘起された複屈折をモデル化した複屈折描像によって計算される[65]。このモデル化には屈折率楕円体の固有ベクトル(速軸・遅軸の向き)、固有値(2つの軸の屈折率)を求める必要がある。しかし、これらを求める為の計算は非常に大変であり[65]、今まで結晶構造が最も単純な立方格子結晶の場合のみ定式化されてきた。立方格子の場合についても、式(15)~(17)に示した通り、遅軸の向き、2軸間の位相差も平方根を含むような複雑な式で記述され、物理的な背景が不明瞭である。

一方で周波数混合描像では和周波・差周波発生を記述することでEO信号 $S(\tau)$ を導出する。 $S(\tau)$ は和周波・差周波電場 $\mathbf{E}_3$ のY成分に比例し(式(73)参照)、その物理的な背景は明確である。更に以下で説明するように導出手順も簡便である。まず、 $\mathbf{E}_3$ のY成分を求めるには非線形分極 $P'_{3Y}(\Omega, \omega_3 - \Omega)$ が分かれば良い。 $P'_{3Y}$ は式(49)を解くだけで求めることができ、複屈折描像のように屈折率楕円体の固有ベクトル、固有値を求める作業は必要ない。

したがってGaSe結晶、LiNbO<sub>3</sub>結晶のように結晶構造が複雑なEO結晶を使用した場合でも複屈折モデルと比較すると簡便にバランス検出信号を導出することができる。よって本章でも第3章と同様

に周波数混合描像を用いてバランス検出信号を導出する。なお使用する変数の定義は第 3 章と同じである為、省略する。

まず最初に非線形分極を計算する。式 (49) のように、点群  $\bar{6}m2$  に属する GaSe 結晶の非線形光学テンソルを以下に示す。

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d \\ d & -d & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (119)$$

このように GaSe 結晶では 3 つの成分のみが残り、その他は 0 となる。次に点群  $3m$  に属する LiNbO<sub>3</sub> 結晶の非線形光学テンソルを以下に示す。

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d' & d \\ d & -d & 0 & d' & 0 & 0 \\ d'' & d'' & d''' & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (120)$$

ここで  $d$ 、 $d'$ 、 $d''$ 、 $d'''$  は全て異なる。このように GaSe 結晶と比べると非 0 成分が多いことが分かる。ただし  $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用する場合、 $d'$ 、 $d''$ 、 $d'''$  は和周波・差周波発生に寄与せず、 $d$  のみが寄与する為、式 (119) と式 (120) は全く同じテンソルになる。よってバランス検出信号も等しくなる。ここで何故、 $d'$ 、 $d''$ 、 $d'''$  が和周波・差周波発生に寄与しないかについてを説明する。まず  $c$ -cut GaSe 結晶、 $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時の結晶座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  と実験座標系  $(\hat{X}, \hat{Y}, \hat{Z})$  の関係を以下に示す。

$$\begin{aligned} \hat{X} &= \hat{x} \cos \varphi - \hat{y} \sin \varphi \\ \hat{Y} &= \hat{x} \sin \varphi + \hat{y} \cos \varphi \\ \hat{Z} &= \hat{z} \end{aligned} \quad (121)$$

テラヘルツ電場、プローブ光は  $Z$  方向へ伝搬するので  $Z$  方向と平行な  $z$  方向の電場は 0 になる (縦波は考えない)。その為、 $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時の非線形分極は以下のように計算できる。

$$\begin{pmatrix} P_{3x}(Z, \omega_3) \\ P_{3y}(Z, \omega_3) \\ P_{3z}(Z, \omega_3) \end{pmatrix} = 2\varepsilon_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d' & d \\ d & -d & 0 & d' & 0 & 0 \\ d'' & d'' & d''' & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_{1x}(\Omega)E_{2x}(\omega_2) \\ E_{1y}(\Omega)E_{2y}(\omega_2) \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ E_{1x}(\Omega)E_{2y}(\omega_2) + E_{1y}(\Omega)E_{2x}(\omega_2) \end{pmatrix} \quad (122)$$

このように  $E_z = 0$  より  $d'$ 、 $d''$ 、 $d'''$  は和周波・差周波発生に寄与しない。そして非線形分極も  $c$ -cut GaSe 結晶と等しくなる。

それでは式 (67) を参考にして  $c$ -cut GaSe 結晶を使用した時の非線形分極  $P'_{3Y}(\Omega, \omega_3 - \Omega)$  を求める。

$$\begin{aligned} P'_{3Y}(\Omega, \omega_3 - \Omega) &\propto \varepsilon_0 d(\omega_3, \Omega, \omega_3 - \Omega) A'_2(\omega_3 - \Omega) \\ &\quad \left[ A'_1(\Omega) \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + iB'_1(\Omega) \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi) \right] \end{aligned} \quad (123)$$

式 (73) から EO 信号  $S(\tau)$  は和周波・差周波数電場の Y 成分に比例することが分かる。和周波・差周波数電場の Y 成分は  $P'_{3Y}$  に比例するので、 $S(\tau)$  も  $P'_{3Y}$  に比例する。そこで、ここでは  $P'_{3Y}(\Omega, \omega_3 - \Omega)$  のみ記述した。 $d(\omega_3, \Omega, \omega_3 - \Omega)$  は GaSe 結晶を使用する場合は  $d = -d_{16}$  とし、LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用する場合は  $d = d_{22}$  とすれば良い。導出された  $P'_{3Y}(\Omega, \omega_3 - \Omega)$  を用いると、バランス検出信号  $S(\tau)$  は以下のように記述できる。

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\Omega) \left[ A'_1(\Omega) \cos(\Psi(\Omega) - 3\varphi) + iB'_1(\Omega) \sin(\Psi(\Omega) - 3\varphi) \right] \exp(-i\Omega\tau) d\Omega \quad (124)$$

フィルタ関数  $f(\Omega)$  は式 (75) と同じである。電場ベクトル波形の  $X, (Y)$  成分を測定する場合は  $\varphi = 0$  ( $\varphi = -\pi/2$ ) とすれば良い。次節では実験検証を行う前に結晶構造の対称性とバランス検出信号の関係について述べる。

### 5.3 結晶構造の対称性とバランス検出信号の関係

本節では結晶構造の対称性とバランス検出信号の関係について述べる。第 1 章で述べた通り、近年では位相整合が取れる最適な EO 結晶を選択することで波形測定が可能な周波数帯域が近赤外域まで拡張されている。今後も新しい EO 結晶の開発と共に波形測定が可能な周波数帯域が拡張することが予想される。そうした時に使用する EO 結晶の対称性からバランス検出信号を予想できれば非常に便利である。そこで本節では結晶構造の対称性とバランス検出信号の関係について述べる。なお本節の内容は次節の実験検証とは関わりがない事を明記する。

まず本節では EO 結晶の結晶軸の向き ( $\varphi$ )、テラヘルツ電場ベクトルの向き ( $\gamma$ ) によってバランス検出信号がどのように記述できるか、が主要な内容となるので位相不整合、吸収、プローブ光のパルス幅の効果などは考えない。まず式 (18) によれば (110) 面の ZnTe 結晶を使用した時の EO 信号は以下のように記述できる。

$$S \propto E_{\text{THz}} (\cos(\varphi + \gamma) + 3 \cos(3\varphi - \gamma)) \quad (125)$$

次に  $c$ -cut GaSe 結晶、(111) 面で切り出された ZnTe 結晶、 $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時のバランス検出信号を計算する。式 (90)、(91) を用いて式 (124) 中の  $A'_1$ 、 $B'_1$ 、 $\Psi$  を  $E_{\text{THz}}$ 、 $\gamma$  に変換する。この時、バランス検出信号  $S(\tau)$  は以下のように記述される。

$$S \propto E_{\text{THz}} \cos(3\varphi - \gamma) \quad (126)$$

式 (126) の特徴は EO 結晶 (角度  $\varphi$ ) を 120° 回転させても、バランス検出信号が不変なことである。この対称性は 3 つの EO 結晶の結晶面の対称性に由来する。結晶構造を可視化するプログラム VESTA [66] (**V**isualization for **E**lectronic and **S**tructural **A**nalysis) を用いて描画した ZnTe、GaSe、LiNbO<sub>3</sub> 結晶の結晶構造を、それぞれ図 5.1、5.2、5.3 に示す。

それぞれの結晶構造は大きく異なるが図 5.1(b)、5.2(b)、5.3(b) を見ると原子の配置が全て六角形になっており 120° の対称性があることが分かる。この結晶面の 120° の対称性の為、EO 信号にも 120° の対称性 (式 (126) 参照) が現れたと思われる。

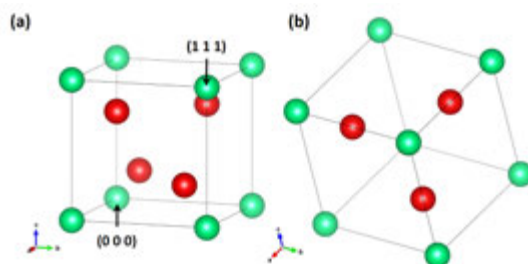


図 5.1: (a)ZnTe 結晶の結晶格子。Zn 原子は緑色、Te 原子は赤色の球体で表示している。(b)(111) 面方向から見た ZnTe 結晶の様子。(a) の (0 0 0) と (1 1 1) にある原子が重ねる方向から見た図である。六角形構造になっており、 $120^\circ$  の対称性がある為、EO 結晶 (角度  $\varphi$ ) を  $120^\circ$  回転させても、バランス検出信号  $S(\tau)$  は不変である。全ての画像は VESTA [66] を用いて描画した。

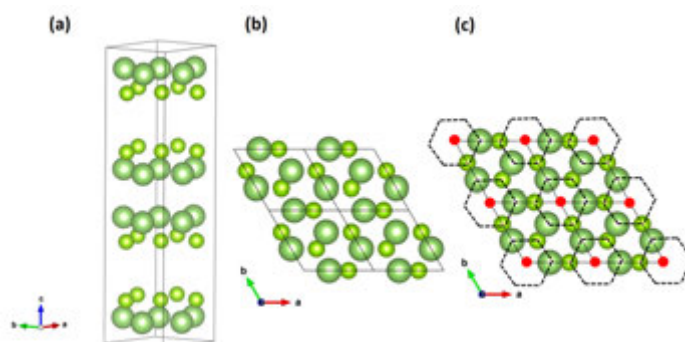


図 5.2: (a)GaSe 結晶の結晶格子。Ga 原子は緑色の大きい、Se 原子は黄緑色の小さい球体で表示している。(b) 結晶格子を  $c$ -axis に対して垂直な面で切った時の図 ( $c$ -cut GaSe 結晶) (c) 正六角形格子を書き加えた図。正六角形格子として見ると、 $120^\circ$  の対称性があることが分かる。よって赤丸を中心に EO 結晶を  $120^\circ$  回転させても、対称性から  $S(\tau)$  は不変である。全ての画像は VESTA [66] を用いて描画した。

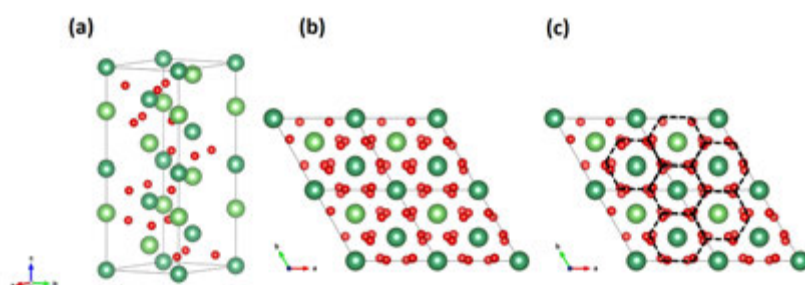


図 5.3: (a)LiNbO<sub>3</sub> 結晶の結晶格子。Li 原子は薄い緑色の、Nb 原子は濃い緑色の、O 原子は小さい赤色の球体で表示している。(b) 結晶格子を  $c$ -axis に対して垂直な面で切った時の図 ( $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶) (c) 正六角形格子を書き加えた図。図 5.2 と同様に EO 結晶を  $120^\circ$  回転させても、対称性から  $S(\tau)$  は不変である。全ての画像は VESTA [66] を用いて描画した。

## 5.4 本章の理論構築の結論

本章では  $c$ -cut GaSe 結晶、(111) 面で切り出された ZnTe 結晶、 $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時の EO 信号を周波数混合描像を用いて計算した。上記 3 種類の結晶は全て図 5.4(a) に示したような正六角形の結晶格子で構成されている (図 5.1、5.2、5.3 参照)。正六角形は  $120^\circ$  の対称性を持つ為、EO 結晶を  $120^\circ$  回転させてもテラヘルツ電場とプローブ光電場にとって、結晶は不変である。そうした EO 結晶の対称性から、バランス検出信号  $S$  も  $120^\circ$  の対称性を持つこと、つまり EO 結晶を  $120^\circ$  回転させてもバランス検出信号  $S$  は不変であるということが分かった (図 5.4(b) 参照)。それでは、次節では理論構築の結果を用いて偏光分光測定 (各周波数成分の偏光状態を測定すること) が可能か、実験検証を行う。

## 5.5 実験検証

本節では (111) 面で切り出された ZnTe 結晶、 $c$ -cut GaSe 結晶、 $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用して電場ベクトル波形を計測する。前章で示した通り同じ電場ベクトル波形を計測しても、EO 結晶ごとにテラヘルツ電場の検出効率 ( $f(\Omega)$ ) が異なるので、EO 結晶を変えると測定される電場ベクトル波形も変わってしまう。その為、測定された電場ベクトル波形を単純に比較しても意味はない。一方、第 3 章で示した通り、各周波数成分の偏光状態は、使用する EO 結晶に依らず等しいはずである。そこで本章の実験検証でも、3 つの EO 結晶それぞれを使用して測定された電場ベクトル波形を周波数分解して各周波数成分の偏光状態を比較する。実験配置は第 3 章、第 4 章の測定系と同じである。また電場ベクトル波形から各周波数成分の偏光状態 (楕円率角と旋光角) を求める方法は第 3 章とほぼ同様の手順で行った。唯一の違いは、回転 EO 結晶法によって電場ベクトル波形を計測するのではなく、EO 結晶の向きを  $\varphi = 0^\circ$  または、 $90^\circ$  に固定して電場ベクトルの X, Y 成分を別々に測定した点である。これは GaSe 結晶、LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時、テラヘルツ電場由来の信号に比べて残留複屈折由来の信号が非常に大きく、回転 EO 結晶法を用いて計測ができなかったからである。詳細は『付録 B』で述べる。

図 5.5 に (111) 面で切り出された ZnTe 結晶 (厚さ 1 mm)、 $c$ -cut GaSe 結晶 (厚さ 0.1 mm)、 $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶 (厚さ 0.5 mm) を使用して測定された楕円偏光電場ベクトル波形を示す。スケールを合わせる為に GaSe 結晶、LiNbO<sub>3</sub> 結晶を用いて測定された波形をそれぞれ 7 倍、600 倍に拡大している。このように検出波形の振幅が大きく異なるのは検出効率  $f(\Omega)$  の値が結晶ごとに大きく異なるからである。特に LiNbO<sub>3</sub> 結晶はテラヘルツ周波数帯と近赤外周波数帯で屈折率が大きく異なることが知られており [62]、テラヘルツ帯の屈折率  $n(\Omega) = 5.16$  に対して近赤外の群屈折率  $n_g = 2.23$  である為 [63]、位相不整合が非常に大きい。したがって検出効率  $f(\Omega)$  の値は非常に小さくなる。

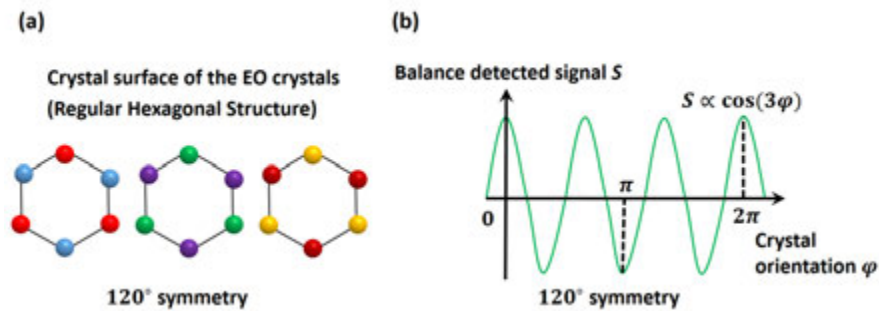


図 5.4: (a) 本章で使用した EO 結晶 3 種類の結晶格子 (正六角形) を表した図。EO 結晶を  $120^\circ$  回転させても元の結晶と重なる。(b) EO 結晶の対称性から導かれるバランス検出信号  $S$  の対称性



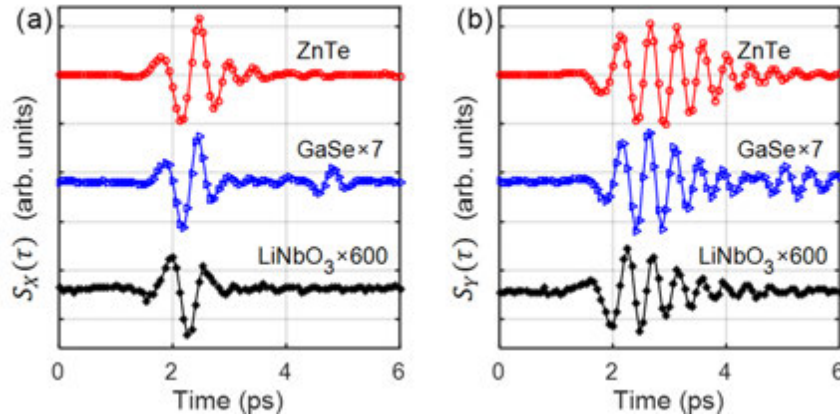


図 5.5: *c* - cut GaSe 結晶 (厚さ 0.1 mm)、(111) 面で切り出された ZnTe 結晶 (厚さ 1 mm)、*c* - cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶 (厚さ 0.5 mm) を使用して測定された楕円偏光電場ベクトル波形 [67]。スケールを合わせる為に GaSe 結晶、LiNbO<sub>3</sub> 結晶を用いて測定された波形をそれぞれ 7 倍、600 倍に拡大している。Reproduced from [Appl. Phys. Lett., Vol. 108, Issue 1, pp. 011105 (2016).], with the permission of AIP Publishing.

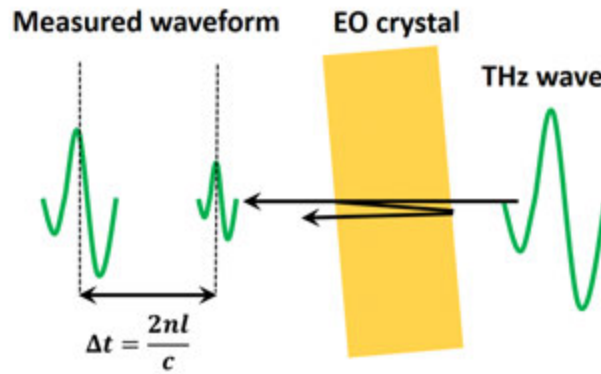


図 5.6: EO 結晶内部でのテラヘルツ電場ベクトル波形の多重反射の様子、及び多重反射がある時の測定波形の様子。多重反射があると  $\Delta t$  だけ遅れた遅延時間にて同様の波形が観測される。

厚さ 0.1 mm の GaSe 結晶を使用した波形にて、4 ps 付近に小さな波形が見える。これは多重反射由来の信号である。図 5.6 に EO 結晶内部でのテラヘルツ電場ベクトル波形の多重反射の様子、及び多重反射がある時の測定波形の様子を示す。EO 結晶の表面及び裏面では反射が起こる。この反射波形は EO 結晶の中を余計に 1 往復する為、最初の波形と比べて  $\Delta t = \frac{2nl}{c}$  の遅延時間だけ遅れて検出される。ここで  $l$  は結晶の厚さ、 $n$  は屈折率、 $c$  は光速である。GaSe 結晶は使用した結晶の中で一番薄い為、多重反射による波形が観測された。遅延時間を大幅に伸ばしていけば LiNbO<sub>3</sub> 結晶、ZnTe でも同様に多重反射による波形が観測されるはずである。

さて、このように使用する EO 結晶を変更すると波形の振幅や多重反射の効果などが変わる為、同じ電場ベクトル波形を測定しているのにも関わらず測定される波形は大きく変わってしまう。しかし、これらの波形を周波数分解して楕円率角  $\theta(\Omega)$  と旋光角  $\Psi(\Omega)$  をプロットすると 3 つの結果は一致するはずである。図 5.7 に 3 つの EO 結晶それぞれを使用して測定された楕円率角  $\theta(\Omega)$  と旋光角  $\Psi(\Omega)$  のスペクトルを示す。このように 3 つの楕円率角  $\theta(\Omega)$  と旋光角  $\Psi(\Omega)$  のスペクトルは非常によく一致している。唯一、LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時の 1 THz 以下の結果が他の 2 つとあまり一致していない。図 5.5

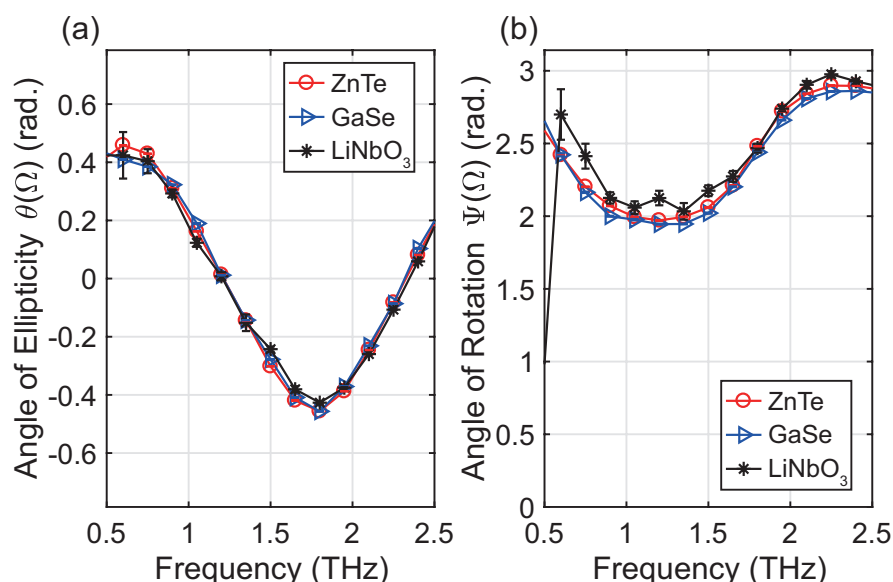


図 5.7:  $c$ -cut GaSe 結晶 (厚さ 0.1 mm)、(111) 面で切り出された ZnTe 結晶 (厚さ 1 mm)、 $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶 (厚さ 0.5 mm) を使用して測定された楕円偏光電場ベクトル波形の楕円率角  $\theta(\Omega)$  と旋光角  $\Psi(\Omega)$  スペクトル [67]. Reproduced from [Appl. Phys. Lett., Vol. **108**, Issue 1, pp. 011105 (2016); Erratum, Appl. Phys. Lett. **112**, in press (2018).], with the permission of AIP Publishing.

に示した通り LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用すると検出感度が非常に低く、測定の SN 比も悪化する。その為、この LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時の 1 THz 以下の結果の不一致は解釈の不備ではなく、測定の精度が足りなかった為、一致しなかったと考えられる。

今まで電場ベクトル波形計測は結晶格子が最も単純な立方格子である点群 ( $\bar{4}3m$ ) に属する結晶の場合のみで行われてきた。そこで本章では点群 ( $\bar{4}3m$ ) 以外の結晶を使用した時の測定方法を考案し、その実験検証を行った。GaSe 結晶は高周波の電場波形計測用の EO 結晶として使用されており [60,61]、GaSe 結晶を使用した電場ベクトル波形計測は将来的には円偏光二色性測定によるカイラリティーを持つ生体分子の測定などに役立つことが期待される。

## 5.6 本章のまとめ

前章まででは (110) 面で切り出された点群 ( $\bar{4}3m$ ) に属する閃亜鉛型結晶のみを EO 結晶として使用していた。一方で近年、中赤外の電場波形測定には位相整合条件を満たす GaSe 結晶が多用されている [60,61]。将来的に中赤外領域でカイラリティーを持つ生体分子の円偏光二色性測定 (第 1 章参照) を行う上で、GaSe 結晶を使用した楕円偏光の電場ベクトル波形計測は非常に有用であると考えられる。しかし、今まで楕円偏光の電場ベクトル波形計測に使用されてきた EO 結晶は結晶格子が最も単純な立方格子である点群 ( $\bar{4}3m$ ) に属する結晶のみだった。

本論文の第 3 章で示した理論構築は非線形分極がある時の Maxwell 方程式を基礎方程式として使用している。Maxwell 方程式はあらゆる場合の電場の伝搬を記述することができる方程式である (古典電磁気学の範囲では)。よって第 3 章で示した理論構築は  $\bar{4}3m$  以外の結晶を使用した時でも使うことができる。本章では第 3 章の手順に従い GaSe 結晶、LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時の検出信号を定式化した。実験検証の結果は『どんな EO 結晶を使用しても各周波数成分の偏光状態を測定することができる』という主張が、点群 ( $\bar{4}3m$ ) に属する結晶以外でも適応できることを示した。

EO 検出では様々な結晶・ポリマー素子を使用されている。例えば、LiTaO<sub>3</sub> 結晶 [68]、有機分子結晶 [69]、4H-SiC 結晶 [32] などが挙げられる。今後も新しい材料が新たに開発されるであろう。本章で

示した対称性の異なる結晶を用いた電場ベクトル測定は、将来的にそれらの結晶・ポリマー素子を用いた電場ベクトル波形計測へも応用可能であると思われる。更に使用する素子ごとに理論構築を行うのではなく、結晶の対称性からバランス検出信号が分かれば非常に便利である。本章では結晶の対称性とバランス検出信号の関係の一例として、3 回対称性を持つ結晶面を使用するとバランス検出信号も 3 回対称性を持つことを発見した。

## 第6章 まとめと展望

### 6.1 まとめ

本論文では電気光学 (EO) 結晶の対称性を利用して楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形の測定とその解釈を行った。EO 結晶内部ではプローブ光とテラヘルツ波の間に位相不整合があり、また吸収によってテラヘルツ電場の振幅が減衰する。このような状況下で、楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトルが直接 EO 結晶に入射されると、プローブ光パルスが感じるテラヘルツ電場ベクトルの振幅と向きは時々刻々と変化してしまう (第 1 章、図 1.7 参照)。その為、測定された楕円偏光のテラヘルツ電場ベクトル波形をどう解釈したら良いのかが、明らかではなかった。

EO 検出で位相不整合の効果を論じた論文は多数あるが、全ての先行研究は直線偏光の電場ベクトル波形の検出を取り扱った研究であった (2.5 節参照)。直線偏光と楕円偏光の場合の大きな違いは、プローブ光と時空間的に重なる電場ベクトルの大きさだけでなく、向きも変わってしまうことである。つまり楕円偏光の電場ベクトル波形を測定し、測定された波形を解釈することができるモデルが必要になる。波形解釈のモデルには大きく分けて以下の 2 つがある。EO 結晶内部で起こる非線形光学効果を、EO 効果によって定式化する複屈折描像と、和周波・差周波発生によって定式化する周波数混合描像である。周波数混合描像ではテラヘルツ電場を静的な電圧として近似しない為、測定された楕円偏光の電場波形を正確に解釈することができる。

そこで本論文では周波数混合描像による EO 検出の理論構築を楕円偏光の場合に拡張し、吸収や位相不整合がある状況下で測定された楕円偏光の電場ベクトル波形の解釈を行った。本研究で示したに理論構築によって明らかになった事を章別に箇条書きにして纏める。

#### I. (第 3 章) どんな閃亜鉛結晶型の EO 結晶を用いても偏光分光が可能であること

楕円偏光の電場ベクトル波形を測定したい動機として、まず各周波数成分の偏光状態を測定したい、偏光分光をしたいという事が挙げられる。偏光分光が可能になると、例えば円偏光二色性測定などから生体分子のキラリティー同定などが可能になる。しかし EO 検出では吸収や位相不整合のせいで正確な楕円偏光の電場ベクトル波形を測定することができない。不正確な電場ベクトル波形を周波数分解して正確な偏光分光が可能なのか明らかではなかった。そこで第 3 章では周波数混合描像による EO 検出の理論構築結果から、不正確な電場ベクトル波形を用いて正確な偏光分光が可能であるという事を明らかにした。実験検証では厚さ・組成の異なる 3 種類の EO 結晶を用意し偏光分光を行った。3 つの測定結果から同等の偏光分光の結果を得ることができ、実験の観点からも正確な偏光分光が可能であるという事を示した。

また本章では、理論構築の根底にある基礎理論として非線形分極がある時の Maxwell 方程式を使用した。Maxwell 方程式はどんな周波数の電磁波、どんな非線形光学結晶の内部でも使用できる方程式であるので、本章で示した理論構築結果もどのような場合でも使用できると思われる。

#### II. (第 4 章) 空気中を伝搬する電場ベクトル波形の復元方法

EO 検出では吸収や位相不整合のせいで正確な楕円偏光の電場ベクトル波形を測定することができない。では吸収や位相不整合の効果を補正することで、実際に空気中を伝搬する電場ベクトル波形を復元することはできないだろうか、というのが第 4 章の動機であった。そこで波形復元の方法を考案し、実験検証として異なる EO 結晶を用いて測定された楕円偏光の電場ベクトル波形

から空気中を伝搬する電場ベクトル波形の復元を行った。異なる波形から共通の波形を復元できたことから EO 結晶内部での吸収や位相不整合の効果を取り除く事に成功したと考えた。

### III. (第 5 章) 対称性の異なる EO 結晶を用いても偏光分光が可能であること

第 3 章では『どんな EO 結晶を用いても偏光分光が可能である』と述べ、実験検証を行ったが、理論構築・実験検証共に点群  $\bar{4}3m$  群に属する結晶を (110) 面で切り出した場合に限られていた。一方、非線形光学結晶 (EO 結晶) は点群  $\bar{4}3m$  群に属する結晶以外にも沢山ある。特に GaSe 結晶は中赤外域で位相整合がよく取れる為、中赤外の電場波形測定によく使用されている。そこで第 5 章では *c-cut* GaSe 結晶、(111) 面 ZnTe 結晶、*c-cut* LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用した時の EO 信号を定式化し、その結果を用いて楕円率角と旋光角スペクトル測定を行った。

## 6.2 今後の展望

### 6.2.1 今後の展望-より広帯域な電場ベクトル計測に向けて

本論文で示した理論構築は非線形分極がある時の Maxwell 方程式を基礎方程式として使用している。また電場ベクトル (偏光) 測定に利用している非線形光学テンソルの構造 ( $3 \times 6$  の行列のどの成分が非 0 になるか) は結晶の対称性によって決まるので測定対象となる電場の周波数に依らず不変である。よって位相整合が取れる非線形光学結晶を選択することで、あらゆる周波数帯で電場ベクトル波形計測が可能になると期待される。

また EO 結晶として使用されている結晶は本論文で使用した結晶の他にも沢山の結晶がある。結晶以外では EO ポリマーというポリマーも使用されている。そして今後も非線形光学定数が大きい材料や位相整合が取れる材料が新たに開発されるであろう。将来的にこれらの新しい EO 結晶・ポリマーを使用して電場ベクトル波形測定を行う際、本論文で示した定式化の手順を用いれば簡便に測定手法の構築・検証を行うことができるであろう。

### 6.2.2 今後の展望-円偏光二色性計測に向けて

偏光分光計測 (楕円率角・旋光角のスペクトル計測) の応用例として第 1 章では円偏光二色性 (Circular dichroism: CD) 測定について述べた。CD とは試料の右回り円偏光と左回り円偏光の吸光度の差スペクトルを測定する手法であり、溶解度などの物理的性質が等しいにも関わらず生体反応が異なるエナンチオマー同士の分別に有用な手法である [23]。CD 測定の難しい点は吸光度の差信号が非常に小さいことである。そこで少しでも高い精度で偏光計測を行う工夫が不可欠となる。ここで高精度化を妨げる要因として光学素子の低い透過率が挙げられる。中赤外領域、特に周波数 20~30 THz ほど (波長 15~10  $\mu\text{m}$ ) の領域ではフォノン吸収による吸収線がある為、周波数応答が平坦な物質が非常に少ない。その為、吸収線がある周波数では測定精度が低下したり、高い測定精度が要求される場合は、透過率を上げる為に周波数ごとに別の素子を用いる必要が出てくる。

一方で、EO 結晶を利用した直線偏光の電場ベクトル波形計測では、一つの EO 結晶だけでも数十 THz の測定帯域を既に達成しており [8-10]、一つの測定で必要とされる周波数領域を網羅することができる。また EO 結晶の対称性を利用した楕円偏光の電場ベクトル波形計測では、WG 偏光子や光弾性変調器不要な偏光計測が実現できる為、光学素子による強度減衰の問題がなく、高精度な CD 測定が期待できる。更に既存の CD 測定では、楕円率角に相当する吸光度の差スペクトルのみが測定できるのに対して、楕円偏光の電場ベクトル波形計測では旋光角情報を含む全ての偏光情報を計測することができる。その為、分子配列や結晶構造による複屈折性を持ちうる固体試料などに於いて明確に複屈折性由来の信号と旋光性由来の信号を分離できる可能性もある。

### 6.2.3 今後の展望-非同期サンプリング法に向けて

本論文で用いた測定系では 1 台のレーザー光源の光を分解してポンプ光、プローブ光として用いていた。共通の光源を用いている為、レーザー光源由来のジッターノイズなどが測定に影響を与えないという長所がある一方で、この手法ではポンプ光、プローブ光の間の相対時間を走査する為に遅延ステージが必要になる。元々、連続的な波形を一定の間隔で離散的にサンプリングする場合、FT-IR などと同様に、周波数分解能は遅延ステージの移動量に制限されてしまう。例えば、図 1.6 に示した波形計測に於いては、遅延ステージを  $10\text{ }\mu\text{m}$  (光路長を  $20\text{ }\mu\text{m}$ ) 間隔で走査して 100 点のデータをサンプリングしている。この条件下では、周波数分解能は  $150\text{ GHz}$  に制限される。より長く遅延ステージを走査するにも限界があり、また測定時間が長くなるに連れて、測定環境からの外乱などの影響が無視できなくなる。

そこで短い測定時間で、長く波形を測定する方法として繰り返し周波数の若干異なる (非同期の)、2 台のレーザー光源を用いて波形を測定する方法がある [70]。2 台のレーザー光源は繰り返し周波数が若干異なる為、2 つの光のタイミングはパルスごとに少しずつずれていく (図 6.1 参照)。典型的には  $f_{\text{rep}}$  が  $100\text{ MHz}$  ほど、 $\Delta$  が  $100\text{ Hz}$  程度の値を持っている為 [70]、 $10\text{ ns}$  ほどの間の時間波形の測定を  $\text{ms}$  スケールの測定時間で行うことができる。またフーリエ変換した際の周波数分解能は  $80\text{ MHz}$  ほどである。この分解能を遅延ステージを用いて達成するには、数メートルの長さの稼働距離が必要であり、現実的ではない。このように 2 台の非同期のレーザー光源を用いて電場波形を測定する手法は、その高い周波数分解能からガスセンシングなどへの応用が期待されている [71]。

上記で説明した非同期サンプリング法と本論文にて提案した電場ベクトル波形計測を組み合わせれば、非常に周波数分解能の高い楕円率角・旋光角スペクトル計測が可能となり、エリプソメトリーや振動円偏光二色性測定など様々な偏光計測への応用が期待される。

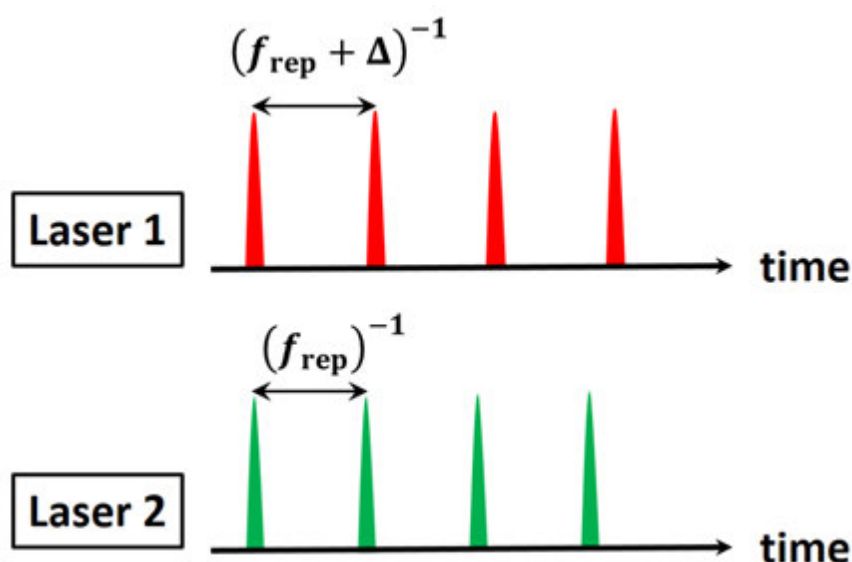


図 6.1: 繰り返し周波数の若干異なる (非同期の)、2 台のレーザー光源。  $f_{\text{rep}}$ 、  $f_{\text{rep}} + \Delta$  が二つの光源の繰り返し周波数を表す。



### 6.2.4 今後の展望-テラヘルツ電場振幅の測定に向けて

本論文を含む様々な研究に於いて、測定されたテラヘルツ電場波形の y 軸の電場の大きさは一般に任意スケール (arb. units) である。これは EO 検出に於いて、直接計測されているのがプローブ光強度、正確に言えば、バランス検出されたプローブ光強度だからである。プローブ光強度はテラヘルツ電場の大きさに比例するので、電場波形の形状は正しく測定されているが、正確なテラヘルツ電場の大きさ (例えば、1 kV/cm など) は分からない。電場の大きさが任意スケールでは、他の研究との定量的な比較を行うことができない。そこで、ポッケルス効果に基づく複屈折描像では、以下に示すバランス検出信号  $\Delta I/I$  とテラヘルツ電場の大きさ  $E_{\text{THz}}$  の関係から  $E_{\text{THz}}$  を算出する [72]。

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{2\pi \ln_g^3 r_{41} t_{\text{EO}}}{\lambda} \times E_{\text{THz}} \quad (127)$$

ここで  $t_{\text{EO}}$  は EO 結晶表面での反射損失を表す。式 (127) に示した通り、 $\frac{\Delta I}{I}$  と  $E_{\text{THz}}$  の間の比例係数を計算すれば、電場の大きさ  $E_{\text{THz}}$  を求めることができる。例えば、文献 [73] では、光伝導アンテナから発生したテラヘルツ電場波形を EO 検出により測定し、そのピーク電場の大きさを 95 V/cm と見積もっている ( $\Delta I/I$  は  $7 \times 10^{-3}$  ほど)。また、文献 [74] では、光整流法を用いて GaAs ウェハから発生したテラヘルツ電場の大きさを 3.03~3.50 V/cm と見積もっている。しかし、式 (127) は位相整合条件が完全に成立している場合の式である。実際には、位相不整合の効果により検出効率が低下する為、式 (127) を用いると電場の大きさは過小評価されてしまう [72]。

そこで、本研究で示したバランス検出信号  $S(\tau)$  の式を用いて、テラヘルツ電場の大きさを見積もることができれば、EO 結晶内部での位相不整合と吸収の効果、そしてプローブ光のパルス幅の効果などを考慮して、より正確なテラヘルツ電場の大きさを見積もることができるはずである。

### 6.2.5 今後の展望-スクイズド光測定に向けて

スクイズド光の説明は第 1.1 節にて行ったが、もう一度説明し、その後、展望を述べる。まず、一般的なスクイズド光の測定では、図 6.2 のような測定系を組み、スクイズド光と参照光の相関を調べることで電場の揺らぎを測定している。スクイズド光と参照光のどちらかの光路中に遅延ステージを設置し、光路長差を変えることで相関関係の時間変化を観察できる。

一方で、近年、EO 検出法による電場ベクトル波形計測手法を用いて、スクイズド光の電場波形を直接、計測できるようになった [4,5]。この手法では、積算しながら電場波形を計測するだけで、参照光を用いることなく、図 6.3 に示すようなスクイズド光の電場波形を計測することができる。図 6.2 のような測定系では、相関関係の時間変化が分かるのに対して EO 検出法によるスクイズド光測定では揺らぎの大きさを直接計測することができるのが特徴である。また、EO 検出法による測定は測定感度が高いという長所も持つ。順を追って説明する。スクイズド光による電場の揺らぎは位置  $Z$ 、時刻  $t$  によってランダムに揺らぐ。また空間的に広がったビーム径  $E(X, Y)$  の中でもランダムに揺らぐ。その為、観察している領域 ( $\Delta X \Delta Y \Delta Z \Delta t$ ) が広がると、スクイズド光による電場揺らぎは平均化されて観察できなくなる。EO 検出法を用いたスクイズド光測定では、測定に使用するプローブ光を強く集光することでビーム径 ( $\Delta X \Delta Y$ ) を小さくし、EO 結晶 ( $\Delta Z$ ) を薄くし、プローブ光のパルス幅 ( $\Delta t$ ) を小さくすることで、感度よく電場の揺らぎを測定することができる。

ただし、ここまでの説明は単色光の場合である。一般に電場ベクトル波形はパルス波形であり、文献 [4,5] に於いてもパルス波形のスクイズド光を測定している。図 6.4 にスクイズドしたパルス光の電場ベクトル波形の一例を示す。パルス波形には様々な周波数成分が含まれており、一般的に角周波数成分でスクイズド状態は異なる可能性がある。しかし、スクイズドした波形を周波数分解して各周波数成分のスクイズド状態を調べる手法はまだ確立されていない。

また、EO 検出法によるスクイズド光の測定とは別個に、近年、偏光スクイズド状態に関する研究が行われている [75,76]。コヒーレント状態とスクイズド状態の偏光状態の揺らぎをポアンカレ



球上にプロットした図を図 6.5 に示す。コヒーレント状態では 3 つのストークスパラメーターの揺らぎの大きさが等しく ( $\Delta S_1 = \Delta S_2 = \Delta S_3$ )、偏光状態の揺らぎの大きさはポアンカレ球上で球体として描画される。一方で、偏光スクイズド状態では 3 つの揺らぎの大きさが等しくない為、ポアンカレ球上では楕円体として描画される。こうした偏光スクイズド状態の測定 [75, 76] にはさきほどの相関測定の手法が用いられており、偏光ゆらぎの大きさの時間変化を直接計測した例はまだない。EO 検出法を用いた楕円偏光の電場ベクトル波形計測を応用することで、偏光ゆらぎの直接測定が期待されている。

このように EO 検出法を用いたスクイズド光の測定には、既存の相関測定にはない長所がある。その一方で、EO 検出法により測定された波形の解釈が不十分である為、測定波形を解析し、より詳細な光の量子情報を復元すること (例えば、波形を周波数分解して各周波数成分のスクイズド状態を調べる、など) ができない。そこで、本論文にて提案した『楕円偏光の電場ベクトル波形を解釈する理論』を応用し、スクイズド状態の光の性質をより詳細に調べることができる理論を構築したい。スクイズド状態は光の量子性によって現れる状態であるので、スクイズド状態の電場波形を解釈は、量子光学による生成消滅演算子を用いて EO 検出を解釈する必要がある [4]。本論文では、量子光

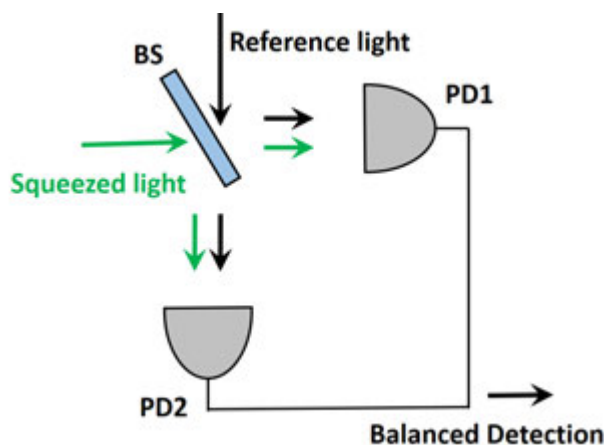


図 6.2: 一般的なスクイズド光の測定方法。マイケルソン干渉計などを組み、スクイズド光と参照光の相関を調べる。BS: Beam Splitter, PD: Photo Detector

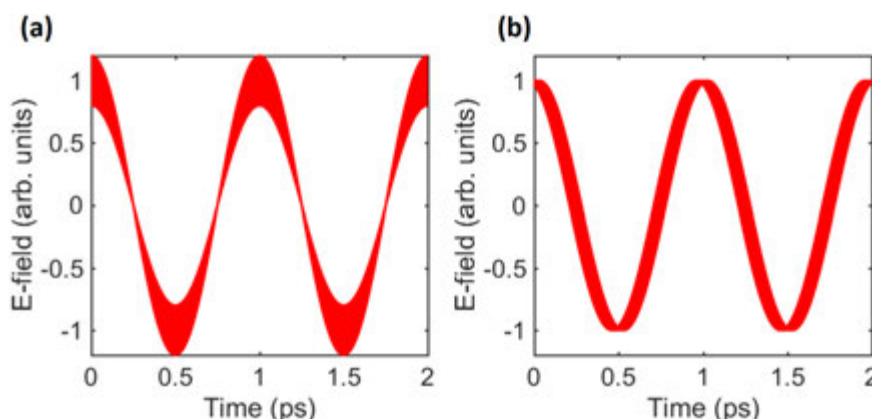


図 6.3: 数値計算で作成したスクイズド光の電場波形 (周波数は 1 THz に設定)。(a) 電場振幅の揺らぎが大きく、位相の揺らぎが小さくなった時の電場波形 (b) 電場振幅の揺らぎが小さく、位相の揺らぎが大きくなった時の電場波形。

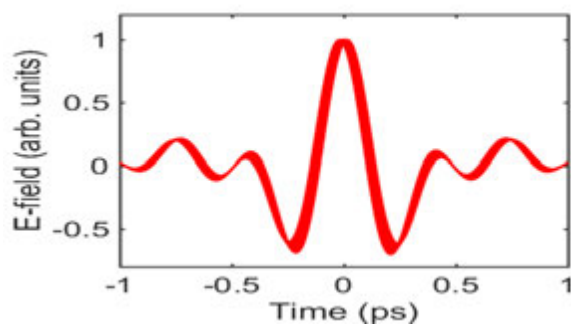


図 6.4: スクイズドしたパルス光の電場ベクトル波形の一例 (数値計算で作成)。様々な周波数成分を含む為、電場振幅、位相のどちらの揺らぎが大きく (小さく) なっているのか、よく分からない。スクイズドした波形を周波数分解して各周波数成分のスクイズド状態を調べる手法はまだ確立されていない。

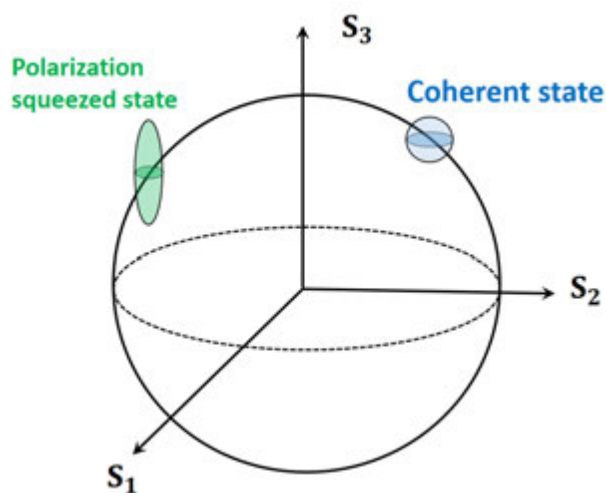


図 6.5: コヒーレント状態と偏光スクイズド状態の偏光状態の揺らぎをポアンカレ球上にプロットした図。3つのストークスパラメーターの揺らぎの大きさ  $\Delta S_1$ 、 $\Delta S_2$ 、 $\Delta S_3$  が等しい状態をコヒーレント状態、3つの揺らぎの大きさが等しくない状態を偏光スクイズド状態と呼ぶ。

学を用いることなく、古典光学に基づいて理論構築を行ったが、量子光学を用いることで、『楕円偏光の電場ベクトル波形』がどのように解釈されるのか、またどのように理論が拡張されるのか、非常に興味深い課題であると言えよう。

## 付 録

### 付録 A 基礎方程式の適用範囲について

本付録では、第3章で使用した基礎方程式、式(45)がどのような条件下で適用できるのかについて説明する。

まず使用する非線形光学結晶として半導体・絶縁体を仮定している為、電流密度  $J$  を0とした。半導体・絶縁体にも電流が流れる現象として、高強度電場が印加された時に起こる絶縁破壊という現象がある。文献[77]によれば、入射電場  $E$  の振幅がおよそ  $1 \text{ MV/cm}$  を超えると、絶縁破壊が現れる為、電流密度  $J = 0$  の近似が成り立たなくなる。よって電場振幅の上限値として  $1 \text{ MV/cm}$  という値を想定する。文献[77]の  $1 \text{ MV/cm}$  という値は静電場か、可視域のレーザー光源を想定していると思われるが、実際に高強度テラヘルツ電場をEO検出にて測定した研究[78]でも、正しく波形が計測できなくなる電場振幅の閾値として  $2 \text{ MV/cm}$  をあげている。よって  $1 \text{ MV/cm}$  という電場振幅の上限値はテラヘルツ領域でも妥当であると言える。

次に非線形光学分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  について説明する。本論文では非線形光学効果として2次の非線形光学効果を使用する。よって使用する結晶は反転対称性のない結晶のみである。反転対称性のある結晶では電場の向きを反転させると、分極も同様に反転する。反転対称性のある結晶では反転操作を行うことで、式(48)は以下のように変形される。

$$-P_{3i}(Z, \omega_3) = 2\varepsilon_0 d_{ijk}(\omega_3; \omega_2, \Omega) (-E_{1j}(Z, \Omega)) (-E_{2k}(Z, \omega_2)) = P_{3i}(Z, \omega_3) \quad (128)$$

これより反転対称性のある結晶では2次の非線形分極は常に0になることが分かる。よって使用するEO結晶は反転対称性のない結晶のみである。

また  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  の内、3次以上の非線形光学効果は無視した。その理由について説明する。まず  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  の担い手として原子に最も弱く束縛された最外殻電子を考える[77]。最外殻電子の束縛エネルギーはおおよそ  $10 \text{ eV}$  ほどであり、最外殻電子と原子核の距離は水素原子のボーア半径を用いて以下のように見積もることができる。

$$a_B = \frac{4\pi\varepsilon_0 \hbar^2}{m_e e^2} = 5.3 \times 10^{-11} \text{ m} \quad (129)$$

この時、最外殻電子が原子核から受ける平均的な電場  $E_{\text{atom}}$  の振幅は以下のように見積もることができる[79]。

$$E_{\text{atom}} = \frac{e}{4\pi\varepsilon_0 a_B^2} = 5.1 \text{ GV/cm} \quad (130)$$

また、原子核から受ける平均的な電場  $E_{\text{atom}}$  は、真空中のインピーダンス  $Z_0 \sim 377\Omega$  を用いて、以下のように光強度  $I_{\text{atom}}$  に換算することができる。

$$I_{\text{atom}} = \frac{1}{2Z_0} |E_{\text{atom}}|^2 = 3.5 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2 \quad (131)$$

さきほど説明したように、入射電場  $E$  の振幅は  $1 \text{ MV/cm}$  以下であり、光強度に換算すると  $1 \text{ GW/cm}^2$  以下である。これは  $E_{\text{atom}}$  と比べて非常に小さい。この時、最外殻電子は原子に強く束縛されており、ポテンシャルの谷周辺のみで振動していると考えることができる(図A.1(a)参照)。その為、入射電場

$E$  の効果を取り入れた分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  は以下のように、摂動論的に電場  $E$  のべき級数によって表現することができる。

$$P_{\text{NL}} = \frac{1}{2!} \frac{\partial^2 P_{\text{NL}}}{\partial E^2} E^2 + \frac{1}{3!} \frac{\partial^3 P_{\text{NL}}}{\partial E^3} E^3 + O(E^4) \quad (132)$$

ここで一般には  $E^2$ 、 $E^3$  の項の係数を以下のように非線形感受率として定義する。

$$\chi^{(2)} \equiv \frac{1}{2!} \frac{\partial^2 P_{\text{NL}}}{\partial E^2} \quad (133)$$

$$\chi^{(3)} \equiv \frac{1}{3!} \frac{\partial^3 P_{\text{NL}}}{\partial E^3} \quad (134)$$

式 (132) から分かる通り、 $\chi^{(2)}$ 、 $\chi^{(3)}$  はそれぞれ 2 次、3 次の非線形光学効果の発生効率を表す変数である。最外殻電子が感じる電場は主に  $E_{\text{atom}}$  である。よって  $\chi^{(2)}$ 、 $\chi^{(3)}$  の典型的な値は  $\chi^{(2)} \sim \chi^{(1)}/E_{\text{atom}}^2$ 、 $\chi^{(3)} \sim \chi^{(1)}/E_{\text{atom}}^3$  と見積もることができる。具体的に計算すると以下ようになる [51, 77]。

$$\chi^{(2)} \sim 10^{-8} \text{ esu} \sim 10^{-9} \text{ cm/V} \quad (135)$$

$$\chi^{(3)} \sim 10^{-14} \text{ esu} \sim 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{V}^2 \quad (136)$$

なおガウス単位系 (esu, statvolt など) と SI 単位系の変換については文献 [51, 79] などに詳しい。式 (135), (136) から分かる通り、電場振幅  $|E|$  が  $|E| \leq 1 \text{ MV/cm}$  の場合、 $\chi^{(2)}|E|^2 \gg \chi^{(3)}|E|^3$  より 3 次の非線形分極は 2 次の非線形分極に比べて非常に小さく、3 次の非線形光学効果を見捨てる近似は妥当と言える。近年では、高強度のテラヘルツ電場を用いて 3 次の非線形光学効果の観測に成功した例が報告されている [80]。しかし、この研究では、非線形媒質として特定の結晶面や反転対称性のある結晶、または気体を使用している為、2 次の非線形光学効果が発現せず、主な非線形光学効果は 3 次になり、3 次の非線形光学効果の観測が可能になる。本論文では二次の非線形光学効果が起こる前提で定式化を行っているので、こうした反転対称性のある結晶や気体媒質を用いた場合には考慮していない。また電場振幅  $|E|$  と  $\chi^{(2)}$  を用いると和周波・差周波発生電場の振幅  $|E_3|$  は  $|E_3| \leq \chi^{(2)}(1 \text{ MV/cm})^2 \sim 1 \text{ kV/cm}$  と見積もることができる。このように和周波・差周波発生電場の振幅は元となるテラヘルツ・プローブ光の電場振幅と比べて  $10^{-3}$  ほど小さいので、和周波・差周波発生電場を元にした非線形光学効果 (図 3.1 にてバツ印をつけた過程) は無視できると考えられる。

最後に本研究で、二次の非線形光学効果の内、テラヘルツ電場と近赤外のプローブ光の間で発生する和周波・差周波発生のみを考慮している点について説明したい。第 3 章の式 (76) などで示したよう

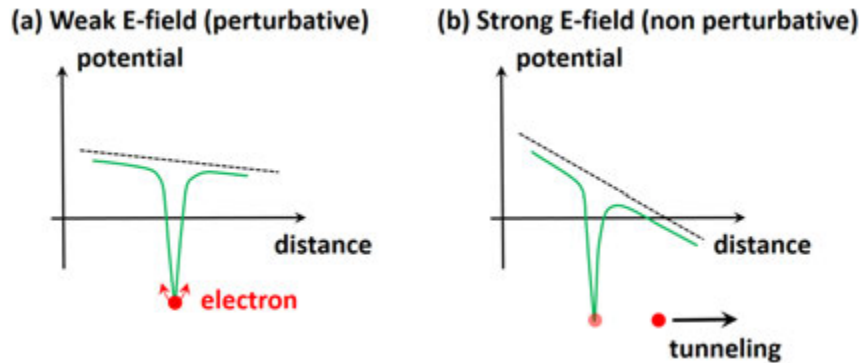


図 A.1: 電子が感じるポテンシャルの原子核からの距離依存性。(a) 外部から受ける電場が弱い場合 (b) 外部から受ける電場が強い場合。本論文では (a) のような電場が弱い状況を想定している為、2 次の摂動 (非線形光学効果) のみを考慮している。黒い点線は外部電場によるポテンシャルを表す。

に EO 検出法ではバランス検出信号  $S(\tau)$  の  $\tau$  依存性を測定する。 $\tau$  は遅延ステージの位置によって変化する量であり、テラヘルツ電場と近赤外のプローブ光の間の相対遅延を表す。テラヘルツ電場の第二高調波発生もプローブ光電場の第二高調波発生も  $\tau$  には依存しない為、 $S(\tau)$  の  $\tau$  依存性を測定する上では影響がない。他にも、位相整合が取れない為、テラヘルツ電場の第二高調波発生もプローブ光電場の第二高調波発生も発生効率が非常に低く、無視できるという理由もある。

## 付録 B 電気光学結晶の残留複屈折が回転電気光学結晶法測定に与える影響

本付録では、EO 結晶の残留複屈折が回転 EO 結晶法による測定に与える影響について以下の国際学会発表を引用して論じる。

(Oral) K. Oguchi *et al.*, International Workshop on Terahertz Science and Technology 2013 (OTST2013) W3C-4 (Kyoto, Japan), (April 1-5, 2013).

一般にテラヘルツ電場が印加されていない EO 結晶は屈折率が等方的な結晶であると仮定されている。しかし、実際には結晶作製時の応力によって生じたひずみにより複屈折が生じてしまう。この残留ひずみによる複屈折を残留複屈折と呼ぶ。本付録では、この残留複屈折が回転 EO 結晶法測定に与える影響について説明する。

図 B.2(a) にテラヘルツ電場が EO 結晶に印加されている時とされていない時のバランス検出信号を示す。2つの信号には大きな差が見られない。これはテラヘルツ電場由来の信号に比べて EO 結晶の残留複屈折由来の信号が非常に大きいからである。EO 結晶を回転させると残留複屈折由来の信号が変化するのは以下に述べる 2つの理由からである。まず 1つ目は、EO 結晶の回転によって残留複屈折の遅軸・速軸の向きが変わるからである。2つ目は残留複屈折が 1つの結晶の場所ごとに異なる為である。残留複屈折は結晶作製時の応力・ひずみによって生じる為、応力・ひずみ分布によって場所ごとに異なる。その為、EO 結晶の回転中、テラヘルツ波とプローブ光のビームスポットが EO 結晶の回転中心に当たっていない場合、テラヘルツ波とプローブ光のビームスポットが移動し (図 B.3 参照)、その結果、残留複屈折も EO 結晶の回転と共に変化する。

このように残留複屈折の影響は結晶作成条件に依存するので統一的な理論構築が難しい。そこで以下のようにバランス検出信号はテラヘルツ波由来の信号と残留複屈折由来の信号の線形和で記述できる [37, 81] と考える。

$$S \propto E_{\text{THz}}(\cos(\varphi + \gamma) + 3\cos(3\varphi - \gamma)) + \text{Res.} \quad (137)$$

Res. は残留複屈折由来の信号である。式 (137) の主張は、テラヘルツ電場が EO 結晶に印加されている時とされていない時のバランス検出信号の差分を取るとテラヘルツ波由来の信号だけを抜き出すことができるということである。図 B.2(b) にテラヘルツ電場が EO 結晶に印加されている時とされていない時のバランス検出信号の差分を示す。更に図 B.2(b) の結果を 1000 回積算した結果を図 B.2(c) に示す。図 B.2(c) では実験結果とフィッティング曲線がよく一致しており式 (137) の通り、バランス検出信号はテラヘルツ波由来の信号と残留複屈折由来の信号の線形和で記述できると考えて良さそうである。

この残留複屈折の影響が非常に問題になるのがテラヘルツ波由来の信号が Res. に比べて非常に小さい時である。テラヘルツ波由来の信号が小さく測定が難しい場合、プローブ光の強度を上げてテラヘルツ波由来の信号を強くすることが考えられる。しかしプローブ光強度を上げると同時に Res. も強くなってしまい検出器の信号が飽和する為、Res. のせいでプローブ光の上限強度が制限される。回避策として QWP の角度を僅かに変える方法が挙げられる。例えば EO 結晶の残留複屈折によってプローブ光が右回りの楕円偏光になってしまったら、この右回りの楕円偏光が QWP 透過後に出来るだけ円偏光になるように QWP を調整するということである。しかし、QWP を僅かにずらしてしまうと残留複屈折による信号とテラヘルツ波の信号のクロスタームによる信号が発生してしまい、どれ

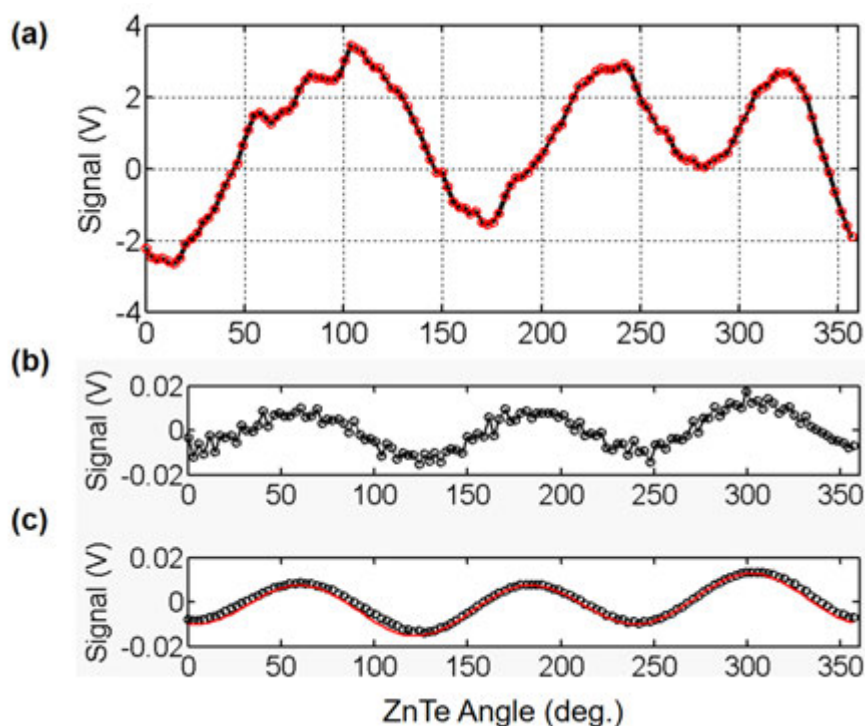


図 B.2: (a) テラヘルツ電場がEO 結晶に印加されている時 (赤丸) とされていない時 (黒丸) のバランス検出信号。(b) テラヘルツ電場がEO 結晶に印加されている時とされていない時のバランス検出信号の差分 (積算回数 1 回)(c) 図 (b) の信号を 1000 回積算した結果。赤い曲線は式 (18) によるフィッティング曲線を表す。

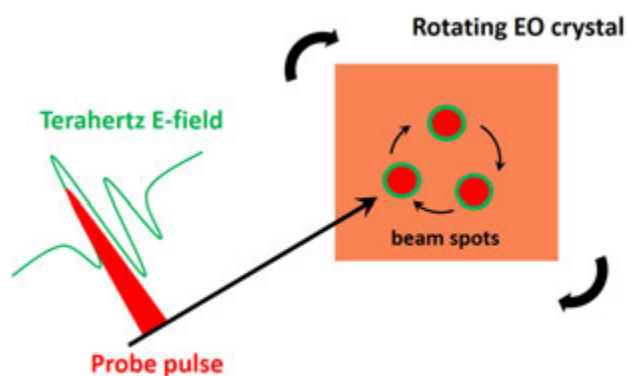


図 B.3: 残留複屈折を持つ EO 結晶を使用して回転 EO 結晶法を行った時の様子。テラヘルツ波とプローブ光のビームスポットがEO 結晶の回転中心に当たっていないと EO 結晶の回転と共にテラヘルツ波とプローブ光のビームスポットが移動してしまう。

だけ感度の良い測定やどれだけ積算回数を増やしても実際の電場ベクトルの向きと比べて僅かにずれた向きが検出されてしまう [20]。このクロスタームによる角度ずれは  $0.1^\circ$  のオーダーなので無視しても良いが、無視できない場合はプローブ光強度を落として残留複屈折の信号を小さくしなければならない。

先に示した測定結果では Res. がテラヘルツ波由来の信号の 100 倍程度の大きさだった為、テラヘルツ波が EO 結晶に印加された時とされていない時の  $S(\tau)$  の差分を取ることでテラヘルツ波由来の信号



だけを抜き出すことができた。しかし、第 5 章で使用した GaSe 結晶、そして特に LiNbO<sub>3</sub> 結晶の場合、Res. がテラヘルツ波由来の信号と比べて数千倍以上大きく回転 EO 結晶法によって電場ベクトルを測定することができなかった。そこで第 5 章では回転 EO 結晶法の代わりに  $\varphi = 0^\circ$ 、 $90^\circ$  に固定して電場ベクトルの X, Y 成分を別々に測定した。

## 付録 C 波形復元の近似： $\Delta/k_1^R$ の大きさについて

式 (110) では位置  $Z = \frac{l}{2}$ 、時間  $t = \tau + \frac{l}{2v_g}$  の振幅  $E_{\text{THz}}(Z, \Omega, t)$  と角度  $\gamma(Z, \Omega, t)$  が測定から得られると述べた。しかし厳密には位置  $Z = \frac{l}{2}$  から僅かにずれており  $Z = \frac{l}{2} - \frac{\Delta(\Omega)}{k_1^R(\Omega)}$  での電場ベクトルが測定される。この  $\frac{\Delta(\Omega)}{k_1^R(\Omega)}$  は非常に小さい為、本文の波形復元では  $\Delta(\Omega)$  の効果を見捨てた。本付録では、この  $\Delta(\Omega)$  の僅かな効果について議論したい。まず  $\Delta(\Omega)$  の定義を示す。

$$\Delta(\Omega) \equiv \tan^{-1} \frac{\sigma_2(\Omega)}{\sigma_1(\Omega)}, \quad (138)$$

ここで  $\sigma_1(\Omega)$  及び  $\sigma_2(\Omega)$  は位相不整合の大きさを表す  $a(\Omega)$  と吸収係数  $\beta_1(\Omega)$  によって以下のように定義される変数である。

$$\begin{aligned} \sigma_1(\Omega) \equiv & \beta_1(\Omega) \cos\left(\frac{a(\Omega)l}{2}\right) \sinh\left(\frac{\beta_1(\Omega)l}{2}\right) \\ & + a(\Omega) \sin\left(\frac{a(\Omega)l}{2}\right) \cosh\left(\frac{\beta_1(\Omega)l}{2}\right) \end{aligned} \quad (139)$$

$$\begin{aligned} \sigma_2(\Omega) \equiv & \beta_1(\Omega) \sin\left(\frac{a(\Omega)l}{2}\right) \cosh\left(\frac{\beta_1(\Omega)l}{2}\right) \\ & - a(\Omega) \cos\left(\frac{a(\Omega)l}{2}\right) \sinh\left(\frac{\beta_1(\Omega)l}{2}\right). \end{aligned} \quad (140)$$

$\sigma_1(\Omega)$  及び  $\sigma_2(\Omega)$  は  $a(\Omega)$  と  $\beta_1(\Omega)$  によって決まるので、 $\Delta(\Omega)$  つまり  $Z = \frac{l}{2}$  からのズレもテラヘルツ電場の角周波数  $\Omega$  に依存する。また式 (140) を見て分かる通り、 $\sigma_2(\Omega) \neq 0$  つまり  $\Delta(\Omega) \neq 0$  となるのは  $a(\Omega) \neq 0$  かつ  $\beta_1(\Omega) \neq 0$  の時のみである。図 C.1 に厚さ 1 mm の ZnTe 結晶を EO 結晶として使用した時の  $\Delta/k_1^R$  の大きさを示す。

ZnTe 結晶は 5.2 THz にフォノン共鳴を持つ為 [26]、高周波になるほど位相不整合と吸収の両方が大きくなる。 $\Delta(\Omega)$  は EO 結晶内部での位相不整合と吸収の両方が大きいほど、大きくなるので高周波になるほど  $\Delta(\Omega)$  も大きくなる。それでも  $\Delta/k_1^R$  は  $5 \mu\text{m}$  以下であり、EO 結晶内部での 2.5 THz の電磁波の波長  $120 \mu\text{m}/n(\Omega) \approx 40 \mu\text{m}$  と比べて十分に短い。



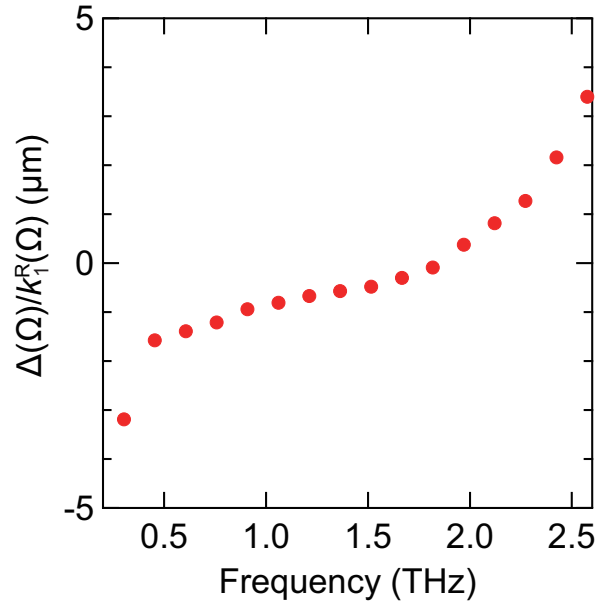


図 C.1: 厚さ 1 mm の ZnTe 結晶を EO 結晶として使用した時の  $\Delta/k_1^R$  の大きさ。位相不整合と吸収の両方が大きい高周波数 (2 THz 以上) で  $\Delta/k_1^R$  は大きくなる。それでも  $\Delta/k_1^R$  は  $5 \mu\text{m}$  以下であり、EO 結晶内部での 2.5 THz の電磁波の波長  $120 \mu\text{m}/n(\Omega) \approx 40 \mu\text{m}$  と比べて十分に短い。Reprinted with permission from ref [54], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **33**, 1946-1956 (2017))

将来的にフォノン共鳴帯に近い周波数帯の電場ベクトル波形を復元したい場合は  $\Delta/k_1^R$  を考慮した方が良いかもしれないが、フォノン共鳴帯に近い周波数帯では検出感度 ( $f(\Omega)$ ) が著しく低い為、現実的ではない。それよりはフォノン共鳴帯が別の周波数帯にあり検出感度 ( $f(\Omega)$ ) が比較的高い、別の EO 結晶を使用する方が現実的である。例えば、4H-SiC のように剛性がある結晶を使用するとフォノン共鳴周波数が高周波側へ移動する為、ZnTe、GaP では測定感度が低い 5~10 THz の電場ベクトル測定も可能になる [32]。以上の理由から  $\Delta(\Omega)$  による位置  $Z = \frac{l}{2}$  からのズレは実験上、問題にならず本文中では、その寄与を無視した。

## 付録 D 波形復元に使用したパラメーター

本付録では、波形復元に使用したパラメーターについて説明する。正確に波形復元を行う為には式 (118) に含まれるパラメーター  $F(\Omega)$ 、 $a(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$  を正確に求める必要がある。この3つのパラメーターを求めるのに必要なのはEO結晶のテラヘルツ周波数領域での屈折率  $n(\Omega)$ 、テラヘルツ周波数領域での吸収係数  $\beta_1(\Omega)$ 、近赤外領域での群屈折率  $n_g$ 、プローブ光パルスのパルス幅  $\tau_p$ 、非線形光学テンソルの値  $\chi^{(2)}$  である。パルス幅  $\tau_p$  は使用する光源のスペック値 90 fs を使用すれば良いし、その他の値は文献値を引用することで値を決めることができる。

しかし、屈折率と吸収係数は文献値と多少異なる可能性がある。なぜなら、EO結晶として使用した ZnTe、GaP は半導体結晶であり、一般に半導体の伝導度・複素屈折率は半導体の不純物ドーパ濃度によって大きく変わる。そうした不純物濃度の違いにより、本研究で使用した厚さ 1 mm の ZnTe と厚さ 0.4 mm の GaP 結晶の  $n(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$ 、 $n_g$  が文献値と等しいとは限らない。そこで2つのEO結晶の  $n(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$ 、 $n_g$  を実際に測定し、その測定値を使用してパラメーター  $F(\Omega)$ 、 $a(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$  を求めた。

$n(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$  測定には図 3.5 の測定系を使用した。測定対象のEO結晶を図 3.5 の pos B の位置に設置して pos C の位置には別のEO結晶を設置する。測定対象のEO結晶が pos B にある時とない時のテラヘルツ電場波形を測定し、各周波数成分の振幅と位相を比較すれば  $n(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$  が得られる。

それでは図 D.1 に  $n(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$  の測定結果を示す。文献 [59] のように、ZnTe の  $n(\Omega)$  は周波数の増加と共に増加している。ZnTe の  $\beta_1(\Omega)$  も 1.7 THz 付近にピーク構造をもっており、その値はおよそ  $2 \text{ mm}^{-1}$  である。これは文献 [59] と同様の傾向である。GaP の  $n(\Omega)$  に関しては、文献 [28] と比較する。本研究の測定値、文献 [28] 共におよそ 3.35 で周波数に依らず一定値を保っていることが分かる。GaP の吸収係数  $\beta_1(\Omega)$  に関しては比較検討できる文献を見つけることができなかったため、特に検討はしない。

次に  $n_g$  の測定方法について説明する。測定対象のEO結晶を図 3.5 の pos A の位置に設置して pos C の位置には別のEO結晶を設置する。測定対象のEO結晶が pos A にある時とない時のテラヘルツ電場波形を測定する。この時のテラヘルツ電場波形を図 D.2 に示す。pos A にEO結晶を設置するとプローブ光の光路長が  $(n_g - 1)l$  だけ長くなり、時間原点が  $(n_g - 1)l/c$  だけ前方に移動する。この時間差からプローブ光パルスの群屈折率  $n_g$  を求めることができる。測定の結果 ZnTe、GaP 結晶にて、それぞれ  $n_g = 3.22, 3.54$  という値を得た。この値は文献 [27, 28] の値と同様の値である。EO結晶の製法の違いや不純物濃度の違いにより、文献値とは多少異なる  $n(\Omega)$ 、 $n_g$ 、 $\beta_1(\Omega)$  が測定から得られる可

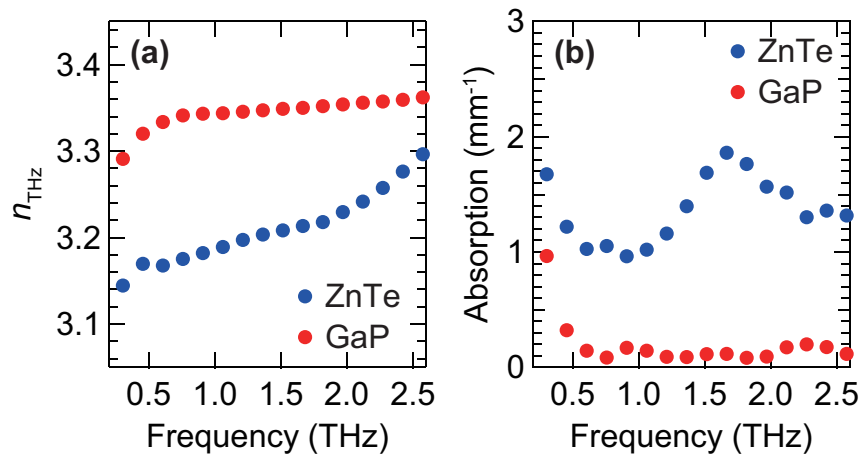


図 D.1: 波形復元に使用したEO結晶 (1 mm の ZnTe と厚さ 0.4 mm の GaP 結晶) の  $n(\Omega)$ 、 $\beta_1(\Omega)$  の測定結果。Reprinted with permission from ref [54], [OSA publishing]. (J. Opt. Soc. Am. B **33**, 1946-1956 (2017))

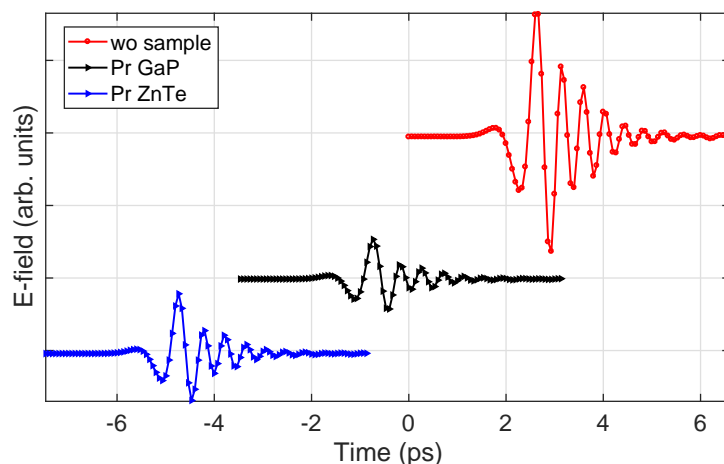


図 D.2: プローブ光パルスの光路中 (pos A) に何もサンプルを入れない時 (図中のキャプション: wo Sample)、サンプルとして GaP 結晶を設置した時 (図中のキャプション: Pr GaP)、サンプルとして GaP 結晶を設置した時 (図中のキャプション: Pr ZnTe) のテラヘルツ電場波形。EO 結晶の厚さを  $l$  とすると  $(n_g - 1)l$  だけ光路長が長くなり、時間原点が  $(n_g - 1)l/c$  だけ前方に移動する。

能性もあったが、測定結果は文献値と近い値を持った。その為、そのまま文献値を適用しても正確な波形復元ができた可能性がある。

最後に非線形光学テンソルの値  $\chi^{(2)}$  について説明する。非線形光学テンソルの値は文献 [28] を引用し ZnTe 結晶では 4 pm/V、GaP 結晶では 1 pm/V という定数を使用した。文献 [45] では非線形光学テンソルの周波数依存性を考慮しているが、これは 5 THz~10 THz 程度に存在するフォノン共鳴を考慮した為である。本論文の実験では 2.5 THz 以下の低周波数帯を使用し、フォノン共鳴を考慮する必要がない。そこで本論文では非線形光学テンソルの値として定数を用いた。

## 付録 E バランス検出信号の $\varphi$ 依存性について

本付録ではバランス検出信号  $S(\tau)$  の  $\varphi$  依存性について周波数混合描像から説明する。68 ページでは (110) 面で切り出された ZnTe 結晶を使用すると  $S(\tau)$  には  $\varphi$  と  $3\varphi$  成分が出てくること (式 (125) 参照)、 $c$ -cut GaSe 結晶、(111) 面で切り出された ZnTe 結晶、 $c$ -cut LiNbO<sub>3</sub> 結晶を使用すると  $3\varphi$  成分のみが出てくること (式 (126) 参照) を述べた。本付録ではバランス検出では、 $S(\tau)$  には  $\varphi$  と  $3\varphi$  成分以外の、例えば  $2\varphi$  と  $4\varphi$  成分は出てこないことを示す。

まずバランス検出信号は EO 結晶、QWP 透過後の  $|E_Y|^2 - |E_X|^2$  に比例する。EO 結晶透過後のプローブ光は元々のプローブ光  $\mathbf{E}_2$  と和周波・差周波発生電場  $\mathbf{E}_3$  の和で書ける。これが QWP を透過すると以下のような偏光状態になる。

$$Q\left(-\frac{\pi}{4}\right) \cdot \begin{pmatrix} E_{2X} + E_{3X} \\ E_{2Y} + E_{3Y} \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} (E_{2X} + E_{3X}) + i(E_{2Y} + E_{3Y}) \\ i(E_{2X} + E_{3X}) + (E_{2Y} + E_{3Y}) \end{pmatrix} \quad (141)$$

ここで QWP のジョーンズ行列は式 (9) で定義した通りである。この時バランス検出信号は以下のようになる。

$$\begin{aligned} S &\propto |i(E_{2X} + E_{3X}) + (E_{2Y} + E_{3Y})|^2 - |(E_{2X} + E_{3X}) + i(E_{2Y} + E_{3Y})|^2 \\ &= 4\text{Re}\left[i(E_{2X} + E_{3X})(E_{2Y}^* + E_{3Y}^*)\right] \approx 4\text{Re}\left[iE_{2X}E_{3Y}^*\right] \end{aligned} \quad (142)$$

ここでプローブ光は X 偏光であり  $E_{2Y} = 0$  であること、和周波・差周波発生電場  $\mathbf{E}_3$  の振幅はプローブ光  $\mathbf{E}_2$  の振幅に比べて非常に小さい為、2 次の微小量である  $E_{3X}E_{3Y}^*$  は無視できることを考慮した。これより分かることはバランス検出信号  $S$  は和周波・差周波発生電場の Y 成分  $E_{3Y}$  によって決まるということである。そして  $E_{3Y}$  は非線形分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  の Y 成分によって決まる。従って  $S(\tau)$  の  $\varphi$  依存性は非線形分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  の Y 成分によって決まる。

次に非線形分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  の Y 成分に  $\varphi$  と  $3\varphi$  成分が出てくる理由について説明したい。式 (49) に示した通り、非線形分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  の計算は結晶座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  で行う。その為、テラヘルツ電場ベクトルもプローブ光の電場ベクトルも座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  に書き直す必要がある。

まずテラヘルツ電場  $\mathbf{E}_1$  とプローブ光電場  $\mathbf{E}_2$  を結晶座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  に変換した際、それぞれが  $\cos \varphi$ 、 $\sin \varphi$  の 1 次関数となる。非線形分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  はテラヘルツ電場  $\mathbf{E}_1$  とプローブ光電場  $\mathbf{E}_2$  の積で記述できるから 2 つの  $\varphi$  の積で書ける。つまり  $\cos(2\varphi)$  と  $\sin(2\varphi)$  の関数になる。最後に非線形分極  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  を結晶座標系  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  から実験座標系  $(\hat{X}, \hat{Y}, \hat{Z})$  に変換すると、もう 1 個  $\varphi$  が加わる。 $2\varphi \pm \varphi = 3\varphi$  or  $\varphi$  より  $\mathbf{P}_{\text{NL}}$  の Y 成分、そしてバランス検出信号  $S$  は  $\varphi$  成分と  $3\varphi$  成分のみで記述できる。

第 5 章で説明した通り、 $\bar{4}3m$  群の結晶の (111) 面や  $\bar{6}m2$  群の結晶の  $c$ -cut 面は三回対称性を持つ ( $120^\circ$  回転させると元の面と重なる)。このような結晶面を使用した時は  $\varphi$  成分が消えて  $3\varphi$  成分のみが残るが、その他の一般的な結晶面については上記の通りバランス検出信号  $S$  は  $\varphi$  成分と  $3\varphi$  成分で記述できる。

## 付録 F テラヘルツ電場ベクトル波形の形状について

本付録では、光伝導アンテナ、または非線形光学結晶 (ZnTe 結晶) を使用した際に発生するテラヘルツ電場ベクトル波形の形状の違いについて議論する。まず、光伝導アンテナを用いた際の電場波形の形状について説明する。光伝導アンテナにポンプ光の超短パルス光を照射すると、光伝導アンテナ中の半導体素子 (多くは低温成長した GaAs) 中にキャリア (自由電子) が生成される。光伝導アンテナの電極部分には電圧が印加されている為、印加電圧によってキャリアは運動を開始する。この時、荷電粒子の運動による双極子放射によって電磁波 (テラヘルツ波) が発生する。双極子放射の内、遠方では以下のように電流  $J$  の 1 階の時間微分に関する項のみがテラヘルツ電場の発生に寄与する [82]。

$$E_1(Z, t) \propto \frac{\partial J}{\partial t} \quad (143)$$

式 (143) より、電流  $J$  の立ち上がり、立下がり早いほど放射されるテラヘルツ波のスペクトルは広帯域になる。主に電流  $J$  の立ち上がりはポンプ光のパルス幅  $\tau_p$  が小さいほど、立下がりは生成されたキャリア寿命が短いほど、早くなる。このようにテラヘルツ波のスペクトル幅は電流  $J$  の応答速度によって決まる為、高周波数成分ほどスペクトル強度が弱くなる [83]。文献 [84] の式 (3)、(7)、(8) を用いて、数値計算により求めた光伝導アンテナから発生するテラヘルツ電場波形とスペクトルを図 F.1 に示す。先ほどの説明通り、ポンプ光のパルス幅  $\tau_p$  が小さくなるほどスペクトル幅が広帯域になっていること、高周波成分ほどなだらかに振幅が落ちていることが分かる。

次に非線形光学結晶 (ZnTe 結晶) を使用した際に発生するテラヘルツ電場ベクトル波形の形状について説明する。非線形光学結晶を用いたテラヘルツ電場の発生方法は光整流法 (2.3 節) と呼ばれている。2.3 節で式 (2)、(3) を用いて説明した通り、テラヘルツ電場はポンプ光の包絡線が作る非線形分極から放出される。式 (2) にポンプ光の電場強度波形を代入して微分方程式を解くと、以下のように文

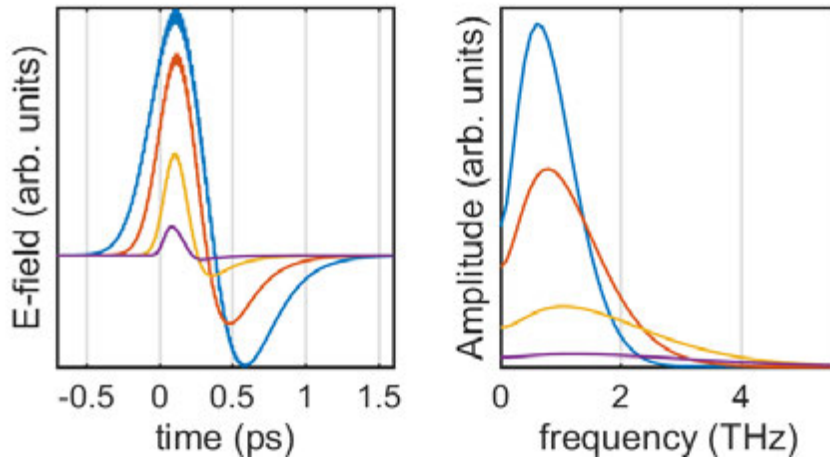


図 F.1: 光伝導アンテナから発生する (左) テラヘルツ電場波形の数値計算結果、(右) スペクトル結果。図中の青線、赤線、黄線、紫線は、ポンプ光のパルス幅  $\tau_p$  がそれぞれ 300、200、100、50 fs の時の結果。計算には文献 [84] の式 (3)、(7)、(8) を用いた。キャリア寿命は低温成長 GaAs の値である 500 fs [85] を使用した。

献 [30] の式 (6) を得ることができる。

$$\begin{aligned}
 A_1(Z=l, \Omega) &= \frac{\sqrt{2}\pi\chi_{\text{eff}}^{(2)}}{n^2(\Omega) - n_g} \tau_p \exp\left(-\frac{\Omega^2\tau_p^2}{4}\right) I_0 \left[ \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{n_g}{n(\Omega)} \right) \exp(i\Omega n(\Omega)l/c) \right. \\
 &\quad \left. + \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{n_g}{n(\Omega)} \right) \exp(-i\Omega n(\Omega)l/c) - \exp(-i\Omega n_g l/c) \right] \\
 &\sim \frac{\sqrt{2}\pi\chi_{\text{eff}}^{(2)} I_0}{n^2(\Omega) - n_g} \tau_p \exp\left(-\frac{\Omega^2\tau_p^2}{4}\right) \\
 &\quad \times \left[ \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{n_g}{n(\Omega)} \right) \exp(i\Omega n(\Omega)l/c) - \exp(-i\Omega n_g l/c) \right] \quad (144)
 \end{aligned}$$

ここで  $\left(1 - \frac{n_g}{n(\Omega)}\right)$  に依存する項は他の 2 項と比べて小さいので [30]、無視した。電場波形  $E_1(Z=l, t)$  のフーリエ成分  $A_1(Z=l, \Omega)$  を用いると、電場波形  $E_1(Z, t)$  は以下のように求めることができる。

$$E_1(Z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} A_1(Z=l, \Omega) \exp(-i\Omega t) d\Omega \quad (145)$$

式 (144) から分かることは  $|A_1|$  は  $|n(\Omega) - n_g|$  と  $\tau_p$  に大きく依存することである。他にも  $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$  に依存するが、第 4 章で説明したように  $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$  は定数として扱われることが多いので、電場波形とスペクトルの形状を議論する上では、あまり重要ではない。実際に式 (144)、(145) を用いて数値計算により求めた電場波形  $E_1(Z, t)$  を図 F.2 に示す。なお、図 F.2 の波形を計算する上で、 $n(\Omega)$  の値は文献 [86] を参考にした。

パルス幅  $\tau_p$  が 500 fs と 200 fs の結果を比べると明らかに後者の方がスペクトル幅が広がっている。これは  $\tau_p$  が大きい場合、スペクトル幅が主に式 (144) の  $\exp\left(-\frac{\Omega^2\tau_p^2}{4}\right)$  の項によって決定されるからである。一方、パルス幅  $\tau_p$  が 100 fs と 30 fs の時の結果を比べると、スペクトル幅はほぼ同じであり、2.0 THz 付近のスペクトル強度が一際強いことが分かる。これは ZnTe 結晶の  $|n(\Omega) - n_g|$ 、つまり位相整合条件によって説明することができる。2.0 THz 付近では  $|n(\Omega) - n_g|$  の値がほぼ 0 になり、ほぼ完全に

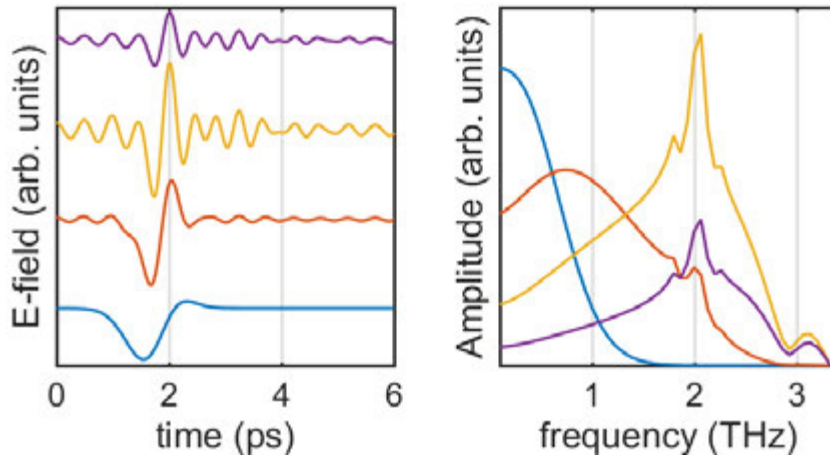


図 F.2: 電気光学結晶 (ZnTe 結晶) から発生する (左) テラヘルツ電場波形の数値計算結果、(右) スペクトル結果。図中の青線、赤線、黄線、紫線は、ポンプ光のパルス幅  $\tau_p$  がそれぞれ 500、250、100、30 fs の時の結果。計算には文献 [30] の式 (6) を用いた。計算に使用した ZnTe 結晶の厚さ  $l$  は、実験検証で使用した結晶の厚さ (1 mm) と等しい。ポンプ光の中心波長も実験検証と同様に 800 nm としている。



位相整合条件が満たされる為、非常に強いスペクトル強度を持つ。一方、3 THz 以上では  $|n(\Omega) - n_g|$  の値が非常に大きくなり、位相整合条件が殆ど満たされない為、パルス幅  $\tau_p$  に依らず、常にスペクトル強度が非常に弱い。以上のような理由から ZnTe 結晶を使用すると、大きなモノサイクルの波形の後に周波数 2.0 THz 付近の振動波形がしばらく続く独特な電場波形を得ることができる。この独特な電場波形は、本論文 (図 1.6 など) の他にも、例えば文献 [26, 30, 87] などの多数の研究で確認されており、ZnTe 結晶を用いた時の一般的な電場波形として見る事ができる。

このようにテラヘルツ電場波形と言っても、その発生方法 (光伝導アンテナ、非線形光学結晶、プラズマなど)、ポンプ光のパルス幅、使用する素子の条件などによって発生するテラヘルツ電場波形が大きく変わってしまう。同様に電場波形の測定方法や使用する素子によって測定波形が大きく変わってしまう。よって本論文の第 4 章にて提案した波形復元の方法は、実際に測定に使用する電場波形や実際に発生している電場波形を見積もる上で有益な方法となるであろう。

## 付録 G 復元波形と薄い EO 結晶を用いて測定された電場ベクトル波形の比較

本付録では、第 4 章で示した復元後の電場ベクトル波形 (図 4.5) と図 1.6 で示した電場ベクトル波形を比較したい。復元操作を行う前の、つまり測定された電場ベクトル波形は私用する EO 結晶によって大きく変わってしまう (図 4.4 参照)。そこで第 4 章では、本論文で提案する復元操作を 2 つの異なる波形に施し、共通の波形を復元し、その復元に成功した (図 4.5)。しかし、2 つの異なる波形から共通の波形を復元できたことと、その共通の復元波形が空气中を伝搬する電場波形と等しいことは同値ではない。理想的には、復元波形と空气中を伝搬する電場波形を比較することが望ましい。しかし、実際には EO 結晶、光伝導アンテナ、空気プラズマなどの、どの素子を用いた方法でも、位相不整合や有限のキャリア寿命の効果によって正確に電場ベクトル波形を測定することはできず、復元波形との比較対象になり得る完璧な参照波形を測定することはできない。次善策として、空气中を伝搬する波形を正確に測定する方法は、使用する EO 結晶を薄くすることである。EO 結晶が薄くなるほど、EO 結晶内での位相不整合や吸収の効果が小さくなるので、周波数特性が平坦になり、測定波形が空气中を伝搬する波形に近づく。

そこで本節では、薄い EO 結晶を用いて測定された電場ベクトル波形を近似的に空气中を伝搬する波形として見なして、第 4 章の復元波形と比較する。参照波形として使用する波形は、厚さ 0.2 mm の ZnTe 結晶を用いて測定された直線偏光の電場波形である。第 4 章で使用していた ZnTe 結晶は厚さが 1 mm ほどあった為、それと比べると厚さが 1/5 になったことで位相不整合や吸収の効果が小さくなり、測定された電場波形は空气中を伝搬する波形に近づいたはずである。

では、0.2 mm の ZnTe 結晶を用いた時の直線偏光の参照波形と楕円偏光の復元波形を比較する為の手順について説明する。第 4 章では、0.6 THz 用の単色光用の石英製の 1/4 波長板を用いて、偏光状態を直線偏光から楕円偏光に変換した。そこで、楕円偏光の復元波形に対して、石英波長板のパラメーターを入れて直線偏光に戻す。石英波長板のジョーンズ行列には、式 (11) で定義した  $Z(\alpha)$  の逆行列を使用する。ここで、遅軸の向きを表す角度  $\alpha$  は  $45^\circ$  とし、石英波長板の位相差  $C$  は式 (89) で定義した値を使用する。最後に、直線偏光に変換した復元波形を回転行列  $R(\alpha)$  を用いて回転させる。この回転操作は 0.2 mm の ZnTe 結晶を用いた時の参照波形と偏光方向を一致させる為に必要な操作である。今回は直線偏光に変換した復元波形を  $-50^\circ$  ほど回転させた。



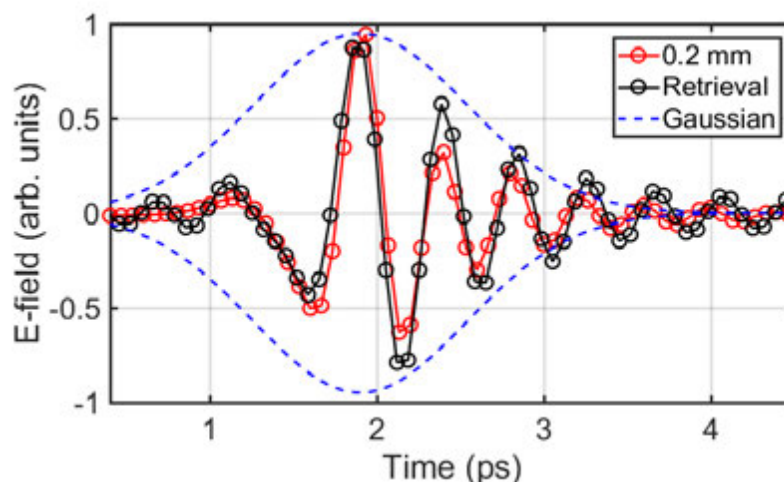


図 G.1: 厚さ 0.2 mm の薄い ZnTe 結晶を用いて測定された直線偏光の参照電場ベクトル波形 (赤い○と実線) と第 4 章の楕円偏光の復元波形を直線偏光に変換した時の電場ベクトル波形 (赤い○と実線) の比較結果。2 つの波形をガウシアン型のパルスで近似した時の結果を青い点線で示している (パルス幅は 900 fs ほど)。

以上の操作によって変換された復元波形と 0.2 mm の ZnTe 結晶を用いた時の参照波形の比較結果を図 G.1 に示す。電場振幅が比較的大きい 1.3~3.2 ps 付近の範囲では、2 つの波形がよく一致した。一方、電場振幅が比較的小さい 1 ps 付近や 3.2 ps 以降では、復元波形の方みに振動する波形成分が見られた。この振動する波形成分は波形復元に使用したパラメーター (EO 結晶の屈折率と吸収係数) の精度と復元前の電場波形の精度が低かった為に生じたノイズ波形であると考えている。電場振幅が比較的大きい範囲内では、テラヘルツ電場波形の方がノイズ波形よりも十分に大きい為、ノイズ波形の影響は小さく 2 つの波形はよく一致したと思われる。

よって、電場振幅が比較的大きい範囲内では、空气中を伝搬している波形に近い電場ベクトル波形と本論文で提案した復元方法を用いて復元された電場ベクトル波形が一致することを確認できた。将来的に電場振幅が小さい範囲でも精度よく復元を行う為には、より高い精度で復元に使用するパラメーター (EO 結晶の屈折率と吸収係数)、及び復元に使用する電場ベクトル波形を測定する必要がある。

## 参考文献

- [1] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith, “Picosecond photoconducting hertzian dipoles,” *Appl. Phys. Lett.* **45**, 284–286 (1984).
- [2] S. Wang and X.-C. Zhang, “Pulsed terahertz tomography,” *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37**, R1–R36 (2004).
- [3] D. M. Mittleman, S. Hunsche, L. Boivin, and M. C. Nuss, “T-ray tomography,” *Opt. Lett.* **22**, 904–906 (1997).
- [4] A. S. Moskalenko, C. Riek, D. V. Seletskiy, G. Burkard, and A. Leitenstorfer, “Paraxial theory of direct electro-optic sampling of the quantum vacuum,” *Phys. Rev. Lett.* **115**, 263601 (2015).
- [5] C. Riek, D. V. Seletskiy, A. S. Moskalenko, J. F. Schmidt, P. Krauspe, S. Eckart, S. Eggert, G. Burkard, and A. Leitenstorfer, “Direct sampling of electric-field vacuum fluctuations,” *Science* **350**, 420–423 (2015).
- [6] A. V. Kimel, A. Kiirilyuk, A. Tsvetkov, R. V. Pisarev, and T. Rasing, “Laser-induced ultrafast spin reorientation in the antiferromagnet  $\text{TmFeO}_3$ ,” *Nature* **429**, 850–853 (2004).
- [7] C. Vicario, C. Ruchert, F. Ardana-Lamas, P. M. Derlet, B. Tudu, J. Luning, and C. P. Hauri, “Off-resonant magnetization dynamics phase-locked to an intense phase-stable terahertz transient,” *Nat. Photon.* **7**, 720–723 (2013).
- [8] C. Kubler, R. Huber, S. Tubel, and A. Leitenstorfer, “Ultrabroadband detection of multi-terahertz field transients with GaSe electro-optic sensors: Approaching the near infrared,” *Appl. Phys. Lett.* **85**, 3360–3362 (2004).
- [9] E. Matsubara, M. Nagai, and M. Ashida, “Ultrabroadband coherent electric field from far infrared to 200 THz using air plasma induced by 10 fs pulses,” *Appl. Phys. Lett.* **101**, 011105 (2012).
- [10] S. Keiber, S. Sederberg, A. Schwarz, M. Trubetskov, V. Pervak, F. Krausz, and N. Karpowicz, “Electro-optic sampling of near-infrared waveforms,” *Nat. Photon.* **10**, 159–163 (2016).
- [11] E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, “Direct measurement of light waves,” *Science* **305**, 1267–1269 (2004).
- [12] K. T. Kim, C. Zhang, A. D. Shiner, B. E. Schmidt, F. Legare, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, “Petahertz optical oscilloscope,” *Nat. Photon.* **7**, 958–962 (2013).
- [13] P. C. M. Planken, H.-K. Nienhuys, H. J. Bakker, and T. Wenckebach, “Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in  $\text{ZnTe}$ ,” *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 313–317 (2001).

- [14] E. Castro-Camus, J. Lloyd-Hughes, L. Fu, H. Tan, C. Jagadish, and M. B. Johnston, “An ion-implanted InP receiver for polarization resolved terahertz spectroscopy,” *Opt. Express* **15**, 7047–7057 (2007).
- [15] H. Makabe, Y. Hirota, M. Tani, and M. Hangyo, “Polarization state measurement of terahertz electromagnetic radiation by three-contact photoconductive antenna,” *Opt. Express* **15**, 11650–11657 (2007).
- [16] H. Dong, Y. Gong, V. Paulose, and M. Hong, “Polarization state and mueller matrix measurements in terahertz-time domain spectroscopy,” *Opt. Commun.* **15**, 3671–3675 (2009).
- [17] C. M. Morris, R. V. Aguilar, A. V. Stier, and N. P. Armitage, “Polarization modulation time-domain terahertz polarimetry,” *Opt. Express* **20**, 12303–12317 (2012).
- [18] N. Yasumatsu and S. Watanabe, “Precise real-time polarization measurement of terahertz electromagnetic waves by a spinning electro-optic sensor,” *Rev. Sci. Instrum.* **83**, 023104 (2012).
- [19] N. Nemoto, T. Higuchi, N. Kanda, K. Konishi, and M. Kuwata-Gonokami, “Highly precise and accurate terahertz polarization measurements based on electro-optic sampling with polarization modulation of probe pulse,” *Opt. Express* **22**, 17915–17929 (2014).
- [20] N. Yasumatsu, A. Kasatani, K. Oguchi, and S. Watanabe, “High-speed terahertz time-domain polarimeter based on an electro-optic modulation technique,” *Appl. Phys. Express* **7**, 09240 (2014).
- [21] X. Lu and X.-C. Zhang, “Balanced terahertz wave air-biased-coherent-detection,” *Appl. Phys. Lett.* **98**, 151111 (2011).
- [22] Z. Lu, D. Zhang, C. Meng, L. Sun, Z. Zhou, Z. Zhao, and J. Yuan, “Polarization-sensitive air-biased-coherent-detection for terahertz wave,” *Appl. Phys. Lett.* **101**, 081119 (2012).
- [23] L. A. Nafie, T. A. Keiderling, and P. J. Stephens, “Vibrational circular dichroism,” *J. Am. Chem. Soc.* **98**, 2715–2723 (1976).
- [24] P. L. Polavarapu, “New developments in fourier transform infrared vibrational circular dichroism measurements,” *Appl. Spectrosc.* **43**, 1295–1297 (1989).
- [25] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, “Generation of optical harmonics,” *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118–119 (1961).
- [26] H. J. Bakker, G. C. Cho, H. Kurz, Q. Wu, and X. C. Zhang, “Distortion of terahertz pulses in electro-optic sampling,” *J. Opt. Soc. Am. B* **15**, 1795–1801 (1998).
- [27] A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz, “A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling,” *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2321–2323 (1996).
- [28] Q. Wu and X. C. Zhang, “7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor,” *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1784–1786 (1997).
- [29] G. Gallot and D. Grischkowsky, “Electro-optic detection of terahertz radiation,” *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 1204–1212 (1999).

- [30] J. Faure, J. V. Tilborg, R. A. Kaundl, and W. Leemans, “Modeling laser-based table-top THz sources: Optical rectification, propagation and electro-optic sampling,” *Opt. Quantum Electron.* **36**, 681–697 (2004).
- [31] S. P. Jamison, A. M. MacLeod, G. Berden, D. A. Jaroszynski, and W. A. Gillespie, “Temporally resolved electro-optic effect,” *Opt. Lett.* **31**, 1753–1755 (2006).
- [32] M. P. Fischer, J. Buhler, G. Fitzky, T. Kurihara, S. Eggert, A. Leitenstorfer, and D. Brida, “Coherent field transients below 15 THz from phase-matched difference frequency generation in 4H-SiC,” *Opt. Lett.* **42**, 2687–2690 (2017).
- [33] D. H. Auston and M. C. Nuss, “Electrooptic generation and detection of femtosecond electrical transients,” *J. Quantum Electron.* **24**, 184–197 (1988).
- [34] A. Rice, Y. Jin, X. Ma, and X.-C. Zhang, “Terahertz optical rectification from  $[110]$  zinc-blende crystals,” *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1324–1326 (1994).
- [35] Q. Wu and X.-C. Zhang, “Ultrafast electro-optic sensors,” *Appl. Phys. Lett.* **68**, 1604–1606 (1996).
- [36] R. C. Jones, “A new calculus for the treatment of optical systems i. description and discussion of the calculus,” *J. Opt. Soc. Am.* **31**, 488 (1941).
- [37] N. Yasumatsu and S. Watanabe, “Robustness of electric field vector sensing of electromagnetic waves by analyzing crystal angle dependence of the electro-optic effect,” *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 2940–2951 (2013).
- [38] N. C. J. van der Valk, T. Wenckebach, and P. C. M. Planken, “Full mathematical description of electro-optic detection in optically isotropic crystals,” *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 622–631 (2004).
- [39] W. H. McMaster, “Polarization and the stokes parameters,” *Am. J. Phys.* **22**, 351–362 (1954).
- [40] W. H. McMaster, “Matrix representation of polarization,” *Rev. Mod. Phys.* **33**, 8–28 (1961).
- [41] F. L. McCrackin, E. Passaglia, R. R. Stromberg, and H. L. Steinber, “Measurement of thickness and refractive index of very thin films and optical properties of surfaces by ellipsometry,” *J. Res. Natl. Stand. Sec. A* **67**, 363–377 (1963).
- [42] B. Schaefer, E. Collett, R. Smyth, D. Barrett, and B. Fraher, “Measuring the stokes polarization parameters,” *Am. J. Phys.* **75**, 163–168 (2007).
- [43] A. Yariv and P. Yeh, *Optical Waves in Crystals* (Wiley Inter-Science, 2003).
- [44] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics* (Cambridge university press, 2001), seventh edition ed.
- [45] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W. H. Knox, “Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling: Experiment and theory,” *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1516–1518 (1999).
- [46] S. P. Kovalev and G. K. Kitaeva, “Terahertz electro-optical detection: optical phase or energy measurements,” *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 2650–2656 (2013).

- [47] M. Porer, J. Menard, and R. Huber, “Shot noise reduced terahertz detection via spectrally postfiltered electro-optic sampling,” *Opt. Lett.* **39**, 2435–2438 (2014).
- [48] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, “Interactions between light waves in a nonlinear dielectric,” *Phys. Rev.* **127**, 1918–1939 (1962).
- [49] D. A. Kleinman, “Theory of second harmonic generation of light,” *Phys. Rev.* **128**, 1761–1775 (1962).
- [50] R. C. Miller, “Mechanism of second harmonic generation of optical maser beams in quartz,” *Phys. Rev.* **131**, 95–97 (1963).
- [51] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, 1992).
- [52] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley Inter-Science, 1984).
- [53] K. Oguchi, N. Yasumatsu, and S. Watanabe, “Polarization detection of terahertz radiation via the electro-optic effect using zinc-blende crystal symmetry,” *J. Opt. Soc. Am. B* **31**, 3170–3180 (2014).
- [54] K. Oguchi, M. Okano, and S. Watanabe, “Retrieving the undistorted terahertz time-domain electric-field vector from the electro-optic effect,” *J. Opt. Soc. Am. B* **34**, 1946–1956 (2017).
- [55] A. Danylov, “THz laboratory measurements of atmospheric absorption between 6% and 52% relative humidity,” pp. 1–7 (2006).
- [56] S. Watanabe, N. Yasumatsu, K. Oguchi, M. Takeda, T. Suzuki, and T. Tachizaki, “A real-time terahertz time-domain polarization analyzer with 80-MHz repetition-rate femtosecond laser pulses,” *Sensors* **13**, 3299–3312 (2013).
- [57] G. P. Agrawal, *Light Propagation in Gain Media* (Cambridge University Press, 2011).
- [58] R. C. Miller, “Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals,” *Appl. Phys. Lett.* **5**, 17–19 (1964).
- [59] S. R. Tripathi, M. Aoki, M. Takeda, T. Asahi, I. Hosako, and N. Hiromoto, “Accurate complex refractive index with standard deviation of ZnTe measured by terahertz time domain spectroscopy,” *J. J. Appl. Phys.* **52**, 042401 (2013).
- [60] R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser, and A. Leitenstorfer, “Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz,” *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3191–3193 (2000).
- [61] K. Liu, J. Xu, and X. C. Zhang, “Gase crystals for broadband terahertz wave detection,” *Appl. Phys. Lett.* **85**, 863–865 (2004).
- [62] J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma, and J. Kühl, “Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation,” *Opt. Express* **10**, 1161–1166 (2002).
- [63] J. Hebling, A. Stepanov, G. Almasi, B. Bartal, and J. Kühl, “Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts,” *Appl. Phys. B* **78**, 593–599 (2004).

- [64] F. Blanchard and K. Tanaka, “Improving time and space resolution in electro-optic sampling for near-field terahertz imaging,” *Opt. Lett.* **41**, 4645–4648 (2016).
- [65] N. C. J. van der Valk, W. A. M. van der Marel, and P. C. M. Planken, “Terahertz polarization imaging,” *Opt. Lett.* **30**, 2802–2804 (2005).
- [66] K. Momma and F. Izumi, “Vesta 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data,” *J. Appl. Crystallogr.* **44**, 1272–1276 (2011).
- [67] K. Oguchi, H. Iwasaki, M. Okano, and S. Watanabe, “Polarization-sensitive electro-optic detection of terahertz wave using three different types of crystal symmetry: Toward broadband polarization spectroscopy,” *Appl. Phys. Lett.* **108**, 011105 (2016). Erratum, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 029901 (2018).
- [68] C. Winnewisser, P. U. Jepsen, M. Schall, V. Schyja, and H. Helm, “Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO<sub>3</sub>, LiNbO<sub>3</sub> and ZnTe,” *Appl. Phys. Lett.* **70**, 3069–3071 (1997).
- [69] F. Pan, G. Knopfle, C. Bosshard, S. Follonier, R. Spreiter, M. S. Wong, and P. Gunter, “Electro-optic properties of the organic salt 4-n,n-dimethylamino-4'-n'-methyl-stilbazolium tosylate,” *Appl. Phys. Lett.* **69**, 13–15 (1996).
- [70] T. Yasui, E. Saneyoshi, and T. Araki, “Asynchronous optical sampling terahertz time-domain spectroscopy for ultrahigh spectral resolution and rapid data acquisition,” *Appl. Phys. Lett.* **87**, 061101 (2005).
- [71] Y.-D. Hsieh, S. Nakamura, D. G. Abdelsalam, T. Minamikawa, Y. Mizutani, H. Y. T. Iwata, F. Hindle, and T. Yasui, “Dynamic terahertz spectroscopy of gas molecules mixed with unwanted aerosol under atmospheric pressure using fibre-based asynchronous-optical-sampling terahertz time-domain spectroscopy,” *Sci. Rep.* **6**, 28114 (2016).
- [72] R. Shimano, S. Watanabe, and R. Matsunaga, “Intense terahertz pulse-induced nonlinear responses in carbon nanotubes,” *J. Infrared Milli. Terahz. Waves* **31**, 861–869 (2012).
- [73] G. Zhao, R. N. Schouten, N. van der Valk, W. Wenckebachand, and P. C. M. Planken, “A terahertz system using semi-large emitters: noise and performance characteristics,” *Phys. Med. Biol.* **47**, 3699–3704 (2002).
- [74] Q. Wu and X. C. Zhang, “Design and characterization of traveling-wave electrooptic terahertz sensors,” *IEEE J. Selected Top. Quantum Electron.* **2**, 693–700 (1996).
- [75] N. Korolkova, G. Leuchs, R. Loudon, T. C. Ralph, and C. Silberhorn, “Polarization squeezing and continuous-variable polarization entanglement,” *Phys. Rev. A* **65**, 052306 (2002).
- [76] W. P. Bowen, R. Schnabel, H.-A. Bachor, and P. K. Lam, “Polarization squeezing of continuous variable stokes parameters,” *Phys. Rev. Lett.* **88**, 093601 (2002).
- [77] D. Mills, *Nonlinear optics* (Springer, 1998).
- [78] A. Sell, A. Leitenstorfer, and R. Huber, “Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm,” *Opt. Lett.* **33**, 2767–2769 (2008).
- [79] 服部利明, 非線形光学入門 (裳華房, 2009).

- 
- [80] M. C. Hoffmann, N. C. Brandt, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh, and K. A. Nelson, “Terahertz kerr effect,” *Appl. Phys. Lett.* **95**, 231105 (2009).
- [81] Z. Jiang, F. G. Sun, Q. Chen, and X. C. Zhang, “Electro-optic sampling near zero optical transmission point,” *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1191–1193 (1999).
- [82] P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen, and S. R. Keiding, “Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas,” *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 2424–2436 (1996).
- [83] N. M. Burford and M. O. E. Shenawee, “Review of terahertz photoconductive antenna technology,” *J. Opt. Soc. Am. B* **56**, 2424–2436 (2017).
- [84] D. Saeedkia, “Terahertz photoconductive antennas: Principles and applications,” *EuCAP 2011* pp. 3326–3328 (2011).
- [85] S. Matsuura, M. Tani, and K. Sakai, “Generation of coherent terahertz radiation by photomixing in dipole photoconductive antennas,” *Appl. Phys. Lett.* **70**, 559–561 (1997).
- [86] G. Gallot, J. Zhang, R. W. McGowan, T.-I. Jeon, and D. Grischkowsky, “Measurements of the thz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation,” *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3450–3452 (1999).
- [87] A. Tomasino, A. Parisi, S. Stivala, P. Livreri, A. C. Cino, A. C. Busacca, M. Peccianti, and R. Morandotti, “Wideband thz time domain spectroscopy based on optical rectification and electro-optic sampling,” *Sci. Rep.* **3**, 3116 (2013).



## 謝辞

本研究を遂行する上で多くの方のご協力を頂きました。この場を借りて御礼を申し上げたいと思います。まず、指導教官の渡邊紳一准教授には学部4年生から博士課程3年までの6年間に実験技術、発表の仕方、論文の書き方、研究者としての考え方など、沢山の事を教えて頂きました。また東京大学医学部、生物物理学会、医学系の研究者との研究会、産業技術総合研究所(以下、産総研)、東京大学物性研小林研、秋山研、軽井沢合宿、ワシントン大学など様々な研究機関に赴き、様々な研究者の方と触れ合う機会を作って頂いたことに感謝致します。本当にありがとうございます。

慶應義塾大学 物理学科の大橋洋士教授、同学科の中迫雅由教授、電子工学科の神成文彦教授には、お忙しい中、本博士論文の副査を勤めて頂きました。自分では、気づけないようなご指摘を幾つも頂きました。これらのご指摘にお答えする記述を追加したことで、本論文のクオリティーを高めることができたのではないかと考えております。ありがとうございます。

岡野真人専任講師には本研究の実験検証部分にて多大なご協力を頂きました。また学術雑誌に投稿予定の論文原稿や本博士論文の原稿の添削、論文・発表スライドで使用する図の作成に関する助力を何度もして頂きました。

研究室の先輩の安松直弥氏には実験系の使い方、測定プログラムの使い方を教えて頂きました。本研究の主題である電気光学検出法における位相不整合に関して興味を持ったきっかけは、安松氏が開発した回転電気光学結晶法の検証をしていた事がきっかけでした。本研究のきっかけを作って下さった事にも感謝したいと思います。また同じ研究室の先輩が学部4年生の段階で2本も筆頭著者として論文の成果を上げていることは、自分も頑張れば良い成果を上げられるのではないかと、というモチベーションに繋がりました。

立崎武弘 元助教には測定に使用する測定プログラムや装置などについて様々なアドバイスを頂きました。

修士課程1年の時、産総研の波長標準研究室の皆様には、ファイバーレーザー型の光周波数コムの実成技術やそれを用いた測定手法について教えて頂きました。所属研究室での研究テーマと大きく異なる研究テーマに取り組むことで研究者としての視野を広げさせて頂きました。ファイバーレーザーに関する教科書を読んで得た感触と、実際にファイバーを融着して自分でレーザーを作製する上で得た感触は大きく異なり、実際に自分の手でレーザーを作製できたことは非常に貴重な経験だったと思います。学ばせて頂いた技術を用いて、ファイバーレーザーをテラヘルツ波の発生・検出用光源として使用する所まで研究を進めることはできませんでしたが、今後の研究活動に活かして行きたいと思っています。

博士課程1年の時にはアメリカ合衆国のワシントン大学の Abrab 助手の研究室に1カ月ほど滞在させて頂きました。今まで海外経験が殆どなかった為、英語で上手く意思疎通することができませんでしたが Abrab 助手も、その学生の Elyas Bayati 氏も辛抱強く対応して頂きました。なんとか意思疎通ができるようになり、現地で回転電気光学結晶法の測定系立ち上げまで漕ぎつける事ができました。ワシントン大学での滞在のおかげで海外でも研究ができるという自信が得られたと思います。

博士課程2年以降から現在まで、産総研ナノプロセス施設(以下、NPF)では、テラヘルツ偏光測定に使用するメタマテリアル試料作製に必要な微細加工装置を使わせて頂きました。今までクリーンルーム内で作業をした経験は殆どなかった為、最初はどの装置を使えば良いのか、さえ分かりませんでしたが、NPF スタッフの方々から装置使用方法をご教授して頂き、無事、メタマテリアル試料作製ができるようになりました。

博士課程 3 年の時にはドイツ、Konstanz 大学の Alfred Leitenstorfer 教授の研究室に 1 カ月ほど滞在させて頂きました。ファイバーレーザーを光源として用いた様々な測定 (EO 検出によるスクイーズド光測定など) を見学させて頂きました。研究室内で新しいアイデアを組み込んだファイバーレーザーを自作し、その光源を用いた研究まで行っていることには感銘を受けました。また同研究室にてポストドクをされている栗原貴之氏には滞在中、ご自身の経験を踏まえた様々なアドバイスを頂きました。

給付奨学金、海外渡航費の補助、研究奨励助教としての雇用など資金面で支えて下さった慶應義塾大学にも感謝致します。バキット奨学金、大学院奨学金、研究奨励助教などの援助により研究に集中できる環境を整えて頂きました。また KLL 助成金により国際学会 IRMMW に参加することができ、慶應義塾大学若手研究者育成ものづくり特別事業によりワシントン大学、Konstanz 大学に渡航することができました。

また、国内・海外を問わず、出張に関する書類作成などの事務手続きには、渡邊研究室の秘書の小沢知子氏、角谷恭子氏、杉山由美子氏、そして学術研究支援課の方々に大変お世話になりました。

渡邊研究室の卒業生やメンバーの曾澤将昇氏、宮崎貴洋氏、竹田雅俊氏、菱沼亮氏、鈴木健士氏、笠谷敦氏、高井茉佑子氏、佐々木学氏、田中彬裕氏、Jean-Marie Besnier 氏、岩 穂積氏、中山智氏、池田岳弘氏、司馬哲裕氏、田中隆祐氏、柴田浩章氏、住原花奈氏、石根亮介氏、神田大輝氏、鈴木健太氏、辻本敬斗氏、中村円香氏、森脇淳仁氏、小松原望氏、西井大生氏、場本圭一氏、新井陽介氏、石井雄大氏、田中俊太郎氏、田渕稜介氏、西川大智氏にも大変お世話になりました。特に皆様の研究進捗発表から自分の研究テーマ以外の研究テーマに関する知識を学ばせて頂きました。また実験方法を工夫する、装置を変更する、試料作製を工夫する、共同研究者を探す、など様々な対策を建てて研究を進めていく過程を研究のケーススタディとして学ばせて頂きました。

最後に私生活全般を支えて下さった両親に感謝の意を示して擱筆したいと思います。

# 研究業績リスト

## 主となる学術論文

- [1]. K. Oguchi, N. Yasumatsu, and S. Watanabe "Polarization detection of terahertz radiation via the electro-optic effect using zinc-blende crystal symmetry." J. Opt. Soc. Am. B **31**, 3170-3180 (2014).
- [2]. K. Oguchi, H. Iwasaki, M. Okano, and S. Watanabe "Polarization-sensitive electro-optic detection of terahertz wave using three different types of crystal symmetry: Toward broadband polarization spectroscopy." Appl. Phys. Lett. **108**, 011105 (2016); Erratum, Appl. Phys. Lett. **112**, pp 029901 (2018).
- [3]. K. Oguchi, M. Okano, and S. Watanabe "Retrieving the undistorted terahertz time-domain electric-field vector from the electro-optic effect." J. Opt. Soc. Am. B **34**, 1946-1956 (2017).

## 学術論文 (その他)

- [1]. S. Watanabe, N. Yasumatsu, K. Oguchi, M. Takeda, T. Suzuki, and T. Tachizaki "Real-time terahertz time-domain polarization analyzer with 80-MHz repetition-rate femtosecond laser pulses." Sensors **13**, 3299-3312 (2013).
- [2]. N. Yasumatsu, A. Kasatani, K. Oguchi, and S. Watanabe "High-speed terahertz time-domain polarimeter based on an electro-optic modulation technique." Appl. Phys. Express **7**, 092401 (2014).

## 国際学会 (第一著者)

- [1]. (Oral) K. Oguchi, N. Yasumatsu, M. Takeda, T. Tachizaki, and S. Watanabe, "An oscillator based real-time terahertz time-domain polarization measurement system with a spinning electro-optic crystal," International Workshop on Terahertz Science and Technology 2013 (OTST2013) W3C-4 (Kyoto, Japan), (April 1-5, 2013).
- [2]. (Oral) K. Oguchi, N. Yasumatsu, and S. Watanabe, "Time-domain picture of the terahertz vector waveform measured by the electro-optic sampling method using the crystal symmetry," 39th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz) (Tucson, Arizona, USA), T3/C-13.13 (Sep. 16, 2014).
- [3]. (Poster) K. Oguchi, M. Okano, and S. Watanabe, "Retrieval of elliptically-polarized terahertz electric-field pulse shapes by electro-optic sampling," Optical Terahertz Science and Technology (OTST 2017), London, UK, (Apr. 2-7, 2017).

## 国際学会 (その他)

- [1]. (Poster) J. Suzuki, H. Inaba, K. Hosaka, K. Oguchi, S. Okubo, and F. -L. Hong, "A narrow-linewidth fiber-based frequency comb with a high repetition rate," Fundamental Physics Using Atoms (FPUA) 2014, Odaiba, Tokyo (Mar. 15, 2014).

- [2]. E. Bayati, K. Oguchi, S. Watanabe, D. P. Winebrenner and M. H. Arbab, “Terahertz Time-Domain Polarimetry (THz-TDP) For Measuring Chirality,” 42nd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), Cancun, Mexico, 2017 (27 Aug. to 1 Sep. 2017).
- [3]. (Poster) K. Suzuki, K. Oguchi, M. Okano, and S. Watanabe, “Development of terahertz electric-field vector imaging system using a rotating polarizer,” JSAP-OSA Joint Symposia, The 78th JSAP Autumn Meeting 2017 (6a-PA3-18), Fukuoka, Japan, (Sep. 5-8, 2017).

#### 国内学会 (第一著者)

- [1]. 小口研一、安松直弥、竹田雅俊、立崎武弘、渡邊紳一 「高繰り返しフェムト秒レーザーを用いたテラヘルツ波偏光計測装置の開発」 第60回応用物理学会春季学術講演会 (神奈川工科大学) 29a-D1-3(2013年3月29日).
- [2]. 小口研一、安松直弥、渡邊紳一 「位相整合条件を考慮した回転電気光学結晶法の理論と検証実験」 第61回応用物理学会春季学術講演会 (青山学院大学) 18p-E17-1(2014年3月18日).
- [3]. 小口研一、安松直弥、渡邊紳一 「電気光学検出における楕円偏光テラヘルツ波の位相整合の検証」 日本物理学会第69回年次大会 (東海大学) 29pPSA-59(2014年3月29日).
- [4]. 小口研一、岩 穂積、渡邊紳一 「GaSe結晶を用いた回転EO結晶法によるテラヘルツ波偏光計測」 第76回応用物理学会秋季学術講演会 (名古屋国際会議場) 16p-2J-6(2015年9月16日).
- [5]. 小口研一、岡野真人、渡邊紳一 「回転電気光学結晶法によるテラヘルツ電場ベクトル時間波形の復元」 第77回応用物理学会秋季学術講演会 (朱鷺メッセ) 14a-B2-5(2016年9月14日).
- [6]. 小口研一、岡野真人、渡邊紳一 「位相整合条件を考慮した楕円偏光テラヘルツ電場波形の測定」 日本物理学会第72回年次大会 (大阪大学) 18pB14-10(2017年3月18日).

#### 国内学会 (その他)

- [1]. 鈴木淳太、稲場肇、保坂一元、小口研一、大久保章、岩國加奈、大苗敦、赤松大輔、洪鋒雷「高速制御型光周波数コムの高繰り返し周波数化および高出力化」 第74回応用物理学会秋季学術講演会 (同志社大学) 19a-A3-2 (2013年9月19日).
- [2]. (招待講演) 渡邊紳一、安松直弥、笠谷敦、小口研一「テラヘルツ時間領域偏波計測技術の開発」 テラヘルツテクノロジーフォーラム平成26年度第2回技術セミナー (大阪産業大学梅田サテライトキャンパス) (2014年12月15日).
- [3]. 鈴木健太、小口研一、岡野真人、渡邊紳一 「高解像テラヘルツ光ベクトルイメージング装置の開発」 日本物理学会第72回年次大会 (大阪大学) 19pC-PS-17(2017年3月19日).

#### 特許

- [1]. 発明者：渡邊紳一、小口研一「偏波解析装置、及び偏波解析方法」特願2015-124617 (2015年6月22日提出).